UNIVERSITE DE NANCY I

U.E.R. – P.C.B.

THESES

présentées à l'Université de Nancy I
pour l'obtention du grade de
Docteur ès-Sciences Physiques

par

Michel PERRUT
Ancien Elève de l'Ecole Polytechnique

PREMIERE THESE

EXTRACTION LIQUIDE-LIQUIDE HYDRODYNAMIQUE ET TRANSFERT DE MATIERE DANS LES COLONNES A PULVERISATION

DEUXIEME THESE

REGIMES TRANSITOIRES DANS LES COLONNES A DISTILLER

SOUTENUES PUBLIQUEMENT LE 1er MARS 1972, DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

Membres du Jury :

MM.	P.	LE GOFF	Président
	A.	VIGNES	Examinateurs
	J.	VILLERMAUX	
	C.	VERNET	Invités
	R.	LOUTATY	

C.N.R.S. n° A.O. 6395

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41551912_0001

UNIVERSITE DE NANCY I

U.E.R. – P.C.B.

THESES

présentées à l'Université de Nancy I
pour l'obtention du grade de
Docteur ès-Sciences Physiques

par

Michel PERRUT
Ancien Elève de l'Ecole Polytechnique

PREMIERE THESE

EXTRACTION LIQUIDE-LIQUIDE HYDRODYNAMIQUE ET TRANSFERT DE MATIERE DANS LES COLONNES A PULVERISATION

DEUXIEME THESE

REGIMES TRANSITOIRES DANS LES COLONNES A DISTILLER

SOUTENUES PUBLIQUEMENT LE 1er MARS 1972, DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

Membres du Jury :

MM.	P.	LE GOFF	Président
	A.	VIGNES	Examinateurs
	J.	VILLERMAUX	
	C.	VERNET	Invités
	R.	LOUTATY	

C.N.R.S. nº A.O. 6395

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

A mon maître P. Le Goff
en témoignage de ma
respectueuse gratitude

A ma femme
A ma famille
avec toute mon affection

AVANT - PROPOS

Le présent travail a été effectué au département de Génie Chimique du Centre de Cinétique Physique et Chimique sous la direction de Monsieur le Professeur LE GOFF. Qu'il veuille bien trouver ici l'expression de toute notre gratitude pour nous avoir permis de travailler dans d'excellentes conditions et pour tous les conseils avisés qu'il nous a quotidiennement prodigués.

Nous voudrions remercier bien vivement Monsieur le Professeur VIGNES qui nous a utilement orienté au début de notre travail et qui a bien voulu participer à notre jury.

Nous adressons nos sincères remerciements à Monsieur VILLERMAUX pour les conseils qu'il nous a donnés à chaque fois que nous lui avons soumis un problème et pour l'attention avec laquelle il a examiné ce travail.

Nous souhaitons remercier la société ELF-ERAP, en la personne de Monsieur VERNET qui nous a fait l'honneur de participer à notre jury, tant pour l'appui financier qu'elle nous a apporté que par les contacts qu'elle nous a permis d'établir avec les chercheurs du centre de Solaize grâce à la diligence de Messieurs LUTZ et COUSIN.

Ce travail n'a été possible que par la collaboration quotidienne que nous avons entretenue avec Monsieur LOUTATY dont nous avons continué les travaux en lui empruntant tout l'acquis scientifique et toute l'expérience qu'il avait pu accumuler dans ce domaine. Nous voudrions lui exprimer nos plus sincères remerciements et lui apporter le témoignage de notre profonde sympathie.

Nous n'oublierons pas nos collègues chercheurs avec lesquels les discussions ont été souvent fructueuses et nous sommes reconnaissants à Messieurs DULAU, MOUTON et LADURELLI qui ont collaboré avec nous au cours des stages qu'ils ont effectués au laboratoire.

Nous adresserons aussi nos remerciements à l'ensemble des techniciens et administratifs qui ont largement contribué à la réalisation de ce travail.

PLAN GENERAL

- Résumé

- Summary

- Introduction

- Première partie : HYDRODYNAMIQUE D'UNE COLONNE A PULVERISATION EN REGIME PERMANENT

- Deuxième partie : HYDRODYNAMIQUE D'UNE COLONNE A PULVERISATION EN REGIME TRANSITOIRE

- Troisième partie : TRANSFERT DE MATIERE ET DISPERSION AXIALE DANS UNE COLONNE A PULVERISATION

- Quatrième partie : MESURE DE L'EFFICACITE D'UNE COLONNE PAR LA METHODE IMPULSIONNELLE. VARIATION DE L'EFFICACITE AVEC LE DIAMETRE DE LA COLONNE

- Cinquième partie : TRANSFERT DE MATIERE OU DE CHALEUR DANS UNE COLONNE A PULVERISATION : ROLE DES SILLAGES TRANSPORTES PAR LES GOUTTES

- Sixième partie : PROCEDURE D'EXTRAPOLATION : CALCUL PREVISIONNEL D'UNE COLONNE A PULVERISATION

- Conclusion

- Notations

RESUME

Nous avons consacré la première partie de ce travail à l'étude de l'hydrodynamique en régime permanent avec de nombreux couples de liquides ne présentant pas de transfert de matière afin de déterminer l'influence des propriétés physiques des fluides en présence et des caractéristiques de la colonne sur la taille des gouttes, le taux de rétention de la phase dispersée et les débits admissibles.

Dans une seconde partie, nous avons étudié la réponse de l'appareil à un certain nombre de perturbations des débits afin de concevoir une régulation automatique du lit dense.

La troisième partie rend compte des résultats obtenus en présence de transfert de matière : nous avons déterminé le domaine d'existence du lit dense en présence de transfert de matière pour plusieurs systèmes ternaires ; nous avons également évalué les paramètres déterminant l'efficacité de la colonne : transfert de matière proprement dit (aire interfaciale, coefficient de transfert de matière) et dispersion axiale.

Tous ces résultats ayant été obtenus sur des colonnes de faible diamètre, nous avons mesuré l'efficacité de colonnes de plus grands diamètres à l'aide d'une méthode impulsionnelle dont la validité a été vérifiée sur une petite colonne. Nous avons pu ainsi déterminer la variation de l'efficacité et de la dispersion axiale en fonction du diamètre de la colonne dans la quatrième partie.

Reprenant un modèle fondé sur les sillages de phase continue transportés par les gouttes, nous avons donné, dans la cinquième partie, une interprétation du modèle de l'écoulement piston avec dispersion axiale utilisé pour dépouiller nos résultats relatifs au transfert de matière.

Dans une sixième partie, nous présentons une procédure de calcul d'extrapolation permettant de déterminer les dimensions optimales d'une

SUMMARY

In our laboratory, interesting results were obtained during the study of a spray column running with a dense packing of droplets as a direct contact heat exchanger. So, we have been led to unvestigate liquid - liquid extraction in such devices in order to obtain the relations, governing the hydrodynamics and mass transfer, which are necessary for extrapolation to industrial scale.

The first part coneerns results of an experimental investigation of the hydrodynamics at steady state which lead to two relations established with fifteen liquid - liquid pairs : the first one correlates the mean drop diameter with the hole diameter of the dispersed phase injector and liquid properties when drops are formed by jet breakup ; the second correlates the relative velocity of the fluids with the dispersed phase holdup, the terminal velocity of a single drop and a constant depending only on the viscosity ratio.

Unsteady state is studied, in the second part, and responses of the dense packing of droplets to flow rate perturbations lead to a simple regulation system.

In the third part, mass transfer is investigated in two 5 cm-diameter spray column using two ternary systems. The existence of dense packing flow mainly depends on the mass transfer direction. Concentration profiles in the continuous phase have been obtained and are interpreted with the model of piston flow with axial mixing in the continuous phase.

We have also measured the efficiency of larger diameter towers using a pulse technic, the validity of which had been tested on a small diameter column. Thus, axial mixing and efficiency variations with tower diameter are obtained (Forth Part).

In the fifth part, we give an interpretation of the model of piston flow with axial mixing by introducing the effects of wakes translated

by drops.

In the sixth part, a procedure for extrapolation calculations is proposed in order to obtain the optimal dimensions of an industrial tower.

We advise, in conclusion, the use of spray columns with dense packing of droplets for extractions working with large flow rates and small concentration gradients (purification, washing...).

INTRODUCTION

Pour séparer les constituants d'un mélange, on peut faire appel à une méthode "directe", telle que la distillation, l'évaporation, la cristallisation, ou à une méthode "indirecte" consistant à utiliser une autre substance qui aura la propriété d'extraire sélectivement certains des constituants. Cette substance "extractrice" peut être soit un solvant liquide, soit un solide adsorbant, soit une résine échangeuse d'ions etc...

L'extraction liquide - liquide est l'une des opérations unitaires du génie chimique, susceptibles des applications les plus nombreuses et les plus variées, principalement en pétroléochimie, en chimie biologique et en hydrométallurgie. Utilisable pour séparer des liquides difficiles ou impossibles à fractionner par distillation (points d'ébullition trop voisins, formations d'azéotropes, séparation des grandes familles d'hydrocarbures : aromatiques et non aromatiques...), pour concentrer des substances détruites par la chaleur (pénicilline et antibiotiques) ou pour séparer des métaux très voisins (par exemple l'hafnium et le zirconium, l'uranium et le plutonium...), l'extraction liquide - liquide occupe une place toujours plus importante dans l'industrie, suscitant la recherche d'appareils permettant à la fois de traiter des quantités de fluides considérables et d'obtenir une très bonne séparation.

L'appareil le plus simple pour mettre en contact deux liquides immiscibles est la colonne à pulvérisation : l'un des fluides dispersé sous forme de gouttelettes circule par gravité à contre-courant dans la phase continue constituée par l'autre fluide. Etudié et utilisé industriellement depuis longtemps, ce type de colonne présente une efficacité désastreuse qui a limité considérablement son développement, en dépit de ses avantages dus à sa simplicité, sa grande capacité et sa grande fiabilité.

C'est pourquoi depuis 20 ans, de nombreux autres systèmes ont été imaginés pour mettre en contact deux phases liquides. Certains consistent à mettre des obstacles dans la colonne : garnissages, chicanes hori-

zontales, plateaux perforés, grilles, etc... aucun de ces systèmes ne semble présenter d'avantages décisifs sur la simple colonne vide. D'autres systèmes font appel à une dissipation d'énergie mécanique pour mieux disperser une phase dans l'autre : tels sont les nombreux types de colonnes avec agitateur radial, les colonnes à plateaux avec pulsation des débits liquides ou des plateaux, les extracteurs centrifuges, les batteries de mélangeurs-décanteurs... Ces appareils ont des efficacités de transfert satisfaisantes mais ils sont onéreux et fragiles du fait de leurs accessoires mécaniques. De plus, certains sont limités à de petites dimensions, ce qui n'est pas gênant pour des extractions de substances rares, mais est incompatible avec les très gros débits de fluides traités dans les raffineries de pétrole.

La mise en évidence par plusieurs expérimentateurs d'un nouveau mode d'écoulement, le "lit dense", dans les colonnes à pulvérisation, a donc semblé particulièrement prometteuse, cet appareil conciliant dès lors une bonne efficacité avec une grande capacité et une grande simplicité. En effet, alors que dans les colonnes à pulvérisation employées jusqu'à présent, le volume occupé par la phase dispersée (les gouttes) représentait toujours moins de 30 % du volume total et que l'engorgement empêchait d'obtenir des valeurs supérieures, la fraction de volume β occupée par les gouttes varie de 40 à 90 % lorsque l'écoulement est en lit dense.

Une étude du transfert de chaleur par contact direct a montré, dans notre laboratoire, que le lit dense présente deux avantages sur le lit lâche.

- L'aire interfaciale par unité de volume de colonne est nettement plus grande (3 à 5 fois).
- Le mélangeage axial qui diminue considérablement l'efficacité des lits lâches est nettement moins important en lit dense.

Ces résultats nous ont incités à étudier l'application du lit dense à l'extraction liquide - liquide et à essayer de dégager les lois qui régissent l'écoulement et le transfert de matière (ou de chaleur) dans le but de nous doter d'une procédure d'extrapolation aussi sûre que possible et de préparer l'utilisation industrielle de ce procédé.

PREMIERE PARTIE

HYDRODYNAMIQUE D'UNE COLONNE A PULVERISATION EN REGIME PERMANENT

I.1 Résumé

I.2 Introduction

I.3 Procédure expérimentale

I.4 Taille des gouttes dans la dispersion

I.5 Vitesse de déplacement d'une goutte unique

I.6 Hydrodynamique en régime permanent

I.7 Application à l'extrapolation en diamètre

I.8 Conclusion

I.9 Références bibliographiques

I.1 RESUME

On présente les résultats expérimentaux obtenus au cours de l'étude hydrodynamique de colonnes à pulvérisation fonctionnant en lit lâche et en lit dense.

La taille des gouttes a été mesurée par photographie et le diamètre moyen $\bar{d}$ a été corrélé en fonction du diamètre des trous Φ de l'injecteur de phase dispersée et du nombre d'Eotvos $Eo = \frac{g\Delta\rho}{\sigma}\Phi^2$, lorsque les gouttes sont formées par rupture d'un jet.

Pour quinze couples de liquides immiscibles ou contenant un soluté en équilibre, on rend compte du fonctionnement hydrodynamique en lit lâche et en lit dense par deux relations simples entre la vitesse relative des deux phases, le taux de rétention de la phase dispersée et la vitesse de déplacement d'une goutte unique.

Ces relations permettent de prévoir le comportement hydrodynamique par une méthode graphique rapide.

I.2 INTRODUCTION

Dans une colonne à pulvérisation, une phase dispersée sous forme de gouttes circule par gravité à contre-courant au sein d'une phase continue immiscible.

Pour un couple de débits d'entrée des deux phases, il existe deux types d'écoulement en régime permanent :

- le lit lâche, caractérisé par une faible valeur du taux de rétention de la phase dispersée et une grande valeur de la vitesse relative des deux phases ;

- le lit dense, caractérisé par une valeur importante du taux de rétention de la phase dispersée et une faible valeur de la vitesse relative des deux phases.

Ces deux types d'écoulement se confondent au "point d'engorgement" au-delà duquel la colonne ne peut fonctionner de façon stable. Ils peuvent également subsister en même temps dans la colonne, le lit dense en occupant une partie et le lit lâche une autre : c'est l'écoulement dit "en lit mixte".

Jusqu'à présent, les auteurs n'avaient étudié le lit dense qu'en dispersant le kérosène (ou un hydrocarbure) dans l'eau [1, 10, 12, 27] et seul Loutaty [11] avait signalé l'existence du lit dense en dispersant la phase lourde.

Loutaty et Vignes [12] ont présenté les résultats d'une étude complète du fonctionnement hydrodynamique d'une colonne de laboratoire fonctionnant en lit lâche et en lit dense. Cette étude menée sur un seul couple de liquides (kérosène - eau) a montré que les principaux paramètres de l'hydrodynamique sont la taille moyenne des gouttes $\bar{d}$ et le taux de rétention de la phase dispersée β . Pour ce couple de liquides et pour

$\beta > 0{,}10$, la relation :

$$\frac{V_r}{V_r^\infty} = 0{,}725\ (1 - \beta) \qquad (1)$$

entre la vitesse relative des deux phases V_r , la vitesse de déplacement d'une goutte unique en milieu infini V_r^∞ et le taux de rétention a été proposée.

Nous avons repris cette étude dans le but de généraliser la relation (1) en utilisant d'autres couples de liquides et en dispersant soit la phase légère soit la phase lourde.

Nous avons donc été amené à mesurer les grandeurs suivantes :

- le taux de rétention β de la phase dispersée ;
- le diamètre moyen des gouttes $\overline{d}$;
- la vitesse d'une goutte unique en milieu infini V_r^∞ .

I.3 PROCEDURE EXPERIMENTALE

I.31 Matériel

Trois colonnes à pulvérisation du type Elgin ont été utilisées :

- La colonne L , construite en plexiglas, a un diamètre intérieur de 7,4 cm et une hauteur de 133 cm ; elle a été décrite par Loutaty et Vignes [12] précédemment (voir figure 1).

- Les colonnes A et B , construites en verre, ont un diamètre intérieur de 5 cm et une hauteur de 84 cm et 91 cm respectivement (voir figure 2). Les matériaux qui interviennent dans leur montage sont uniquement le verre (éléments EIVS), l'acier inoxydable et le PTFE de façon à résister aux solvants organiques et à éviter une contamination des liquides. Pour un couple donné de liquides, la colonne A permet de disperser la phase légère et la colonne B la phase lourde.

Les injecteurs de gouttes de ces trois colonnes sont constitués par des cônes fermés à leur plus grande base par un plateau perforé interchangeable dont le diamètre est égal au diamètre intérieur de la colonne. Leurs caractéristiques sont rassemblées dans le tableau 1.

Le facteur mouillabilité dicte le choix du matériau à utiliser pour la construction des colonnes et des injecteurs et se révèle d'une grande importance dans l'obtention du lit dense. Ainsi, certains couples de liquides, pour lesquels la phase dispersée mouillait préférentiellement le verre, ont nécessité un traitement des parois des colonnes A et B par du "dry-film de Larkins" (solution à 1 % de diméthyldichlorosilane et 1 % de triméthylchlorosilane dans l'éther de pétrole). De même, pour avoir une dispersion de gouttes uniformes, le plateau perforé doit être préférentiellement mouillé par la phase continue.

Vingt couples de liquides ont été étudiés, certains étant immiscibles, d'autres contenant un soluté en équilibre. Ces couples de

liquides ont été choisis pour couvrir une large gamme de propriétés physiques (voir tableau 2).

I.32 Grandeurs mesurées

- La fraction volumique ou taux de rétention de la phase dispersée β a été mesurée en isolant la partie centrale de la colonne à l'aide soit de deux vannes à boules (colonnes A et B), soit de deux vannes à tiroir (colonne L) reliées mécaniquement. Après décantation des deux phases, on déduit, par simple lecture, le taux de rétention moyen dans le volume compris entre les deux vannes (2500 cm^3 pour la colonne L , 850 cm^3 pour les colonnes A et B).

- La taille des gouttes a été mesurée par une méthode photographique et un dépouillement statistique des tailles a permis d'obtenir le diamètre moyen $\bar{d}$. Afin d'obtenir le meilleur contraste entre la phase continue et les gouttes, le montage schématisé sur la figure 3 a été réalisé [11]. Il consiste à éclairer par derrière la zone utile de la colonne à l'aide d'un flash électronique, ce qui permet, de plus, d'éviter les réflexions de la lumière sur la colonne. Pour que les gouttes soient nettes et pour pouvoir comparer leur diamètre à la distance séparant deux repères placés sur la paroi de la colonne sans introduire de distorsions dues à la réfraction, les photographies ont été prises en lit dense ; cela permet de plus de pouvoir recenser un grand nombre de gouttes sur chacune d'entre elles et de déduire ainsi la loi de répartition des tailles.

Les photographies ont été prises à un seul niveau dans la colonne vu que, pour les couples de liquides et les hauteurs de colonne étudiés, aucune coalescence entre gouttes n'a été observée ; on a donc supposé que la taille des gouttes reste constante tout le long de la colonne.

- La vitesse de déplacement V_r^{∞} d'une goutte unique en milieu infini a été déterminée dans une colonne annexe en chronométrant le temps de passage entre deux repères. Les gouttes ont été formées à l'aide d'une série d'ajutages de différents diamètres, à vitesse faible, permettant ainsi de déduire de la mesure du volume de la goutte la tension interfaciale du couple de liquides (voir ci-dessous § I.421 et annexe A1).

I.4 TAILLE DES GOUTTES DANS LA DISPERSION

La connaissance de la taille des gouttes est nécessaire pour étudier l'hydrodynamique de la colonne et pour évaluer l'aire spécifique de contact des deux phases dont dépend l'efficacité de la colonne en transfert de matière ou de chaleur (cf. 3e partie).

I.41 Mode de formation des gouttes

La manière avec laquelle un liquide, injecté à travers un ajutage dans un liquide immiscible quitte cet ajutage dépend des propriétés physiques des deux fluides et de la vitesse d'injection u_N de la phase dispersée.

Aux faibles valeurs de u_N, les gouttes se forment lentement, grossissent et se détachent librement lorsqu'elles atteignent leur taille d'équilibre. Quand on augmente u_N, un jet cylindrique apparaît (pour $u_N = u_J$) et, étant instable, se rompt en plusieurs gouttelettes. En augmentant encore u_N, on constate que la longueur du jet passe par un maximum et la taille des gouttes par un minimum [3] pour $u_N = u_{max}$. Les gouttes sont assez uniformes tant que u_N reste inférieure à u_{max} au-delà de laquelle elles présentent une importante distribution de tailles. Pour de très grandes vitesses d'injection, une atomisation en très fines gouttelettes a lieu.

Lorsqu'on forme les gouttes à l'aide d'un plateau perforé de nombreux trous, la nature du matériau le constituant intervient [7] :

- Si le matériau est mouillable préférentiellement par la phase dispersée, aux faibles vitesses de passage u_N à travers les trous, le liquide à disperser ne mouille pas uniquement le périmètre des trous mais une surface importante ; il en résulte la formation de grosses gouttes sans forme précise et non reproductibles ; aux grandes vitesses d'injection, cette reproductibilité s'améliore.

- Si le matériau est mouillable préférentiellement par la phase continue, les gouttes se forment de façon identique à celle obtenue avec un ajutage unique et décrite ci-dessus.

C'est pour cette raison que nous avons toujours utilisé des plateaux perforés préférentiellement mouillables par la phase continue.

I.42 Etudes antérieures

Nous détaillons en annexe AI l'ensemble des résultats des études antérieures, faites avec un ajutage unique. Nous ne présentons ici que les résultats les plus importants.

I.421 Gouttes obtenues à faible vitesse u_N

a) Pour une vitesse u_N quasi-nulle, on déduit le volume V de la goutte formée en égalant la poussée d'Archimède $Vg\Delta\rho$ et les forces interfaciales $\pi\Phi\sigma$; Harkins et Brown [6] ont introduit un coefficient de correction f pour tenir compte de la partie de la goutte qui reste suspendue à l'ajutage au moment où la goutte se détache :

$$V_0 = \frac{\pi\Phi\sigma}{g\Delta\rho} f \qquad (2)$$

Ces auteurs ont montré que f est une fonction du rapport $\frac{\Phi}{2a}$, a étant la constante de Laplace :

$$a = \left(\frac{2\sigma}{g\Delta\rho}\right)^{1/2} \qquad (3) \quad \text{(voir annexe A1)}$$

b) Pour des vitesses faibles, plusieurs auteurs [8, 13, 16, 18, 20] ont ajouté à la relation (2) des termes correctifs tenant compte des forces d'inertie et des forces de résistance (vois annexe AI).

I.422 Gouttes obtenues par rupture d'un jet

a) La vitesse u_J pour laquelle il y a formation d'un jet a été mesurée par plusieurs auteurs [4, 14, 20, 23] qui ont proposé des corrélations empiriques ou semi-empiriques où le groupement $\left(\frac{\sigma}{\rho_D \Phi}\right)^{1/2}$ semble caractéristique, comme par exemple pour celle présentée récemment par Meister et Scheele [14] :

$$u_J = \sqrt{3} \left(\frac{\sigma}{\rho \Phi} \right)^{1/2} \left(1 - \frac{\Phi}{d} \right)^{1/2} \qquad (4)$$

b) La formation des gouttes provient de la rupture du jet sous l'influence de vibrations provenant d'après Rayleigh [19] d'une distribution de perturbations capillaires. Plusieurs auteurs ont montré que le diamètre moyen des gouttes ainsi formées est proportionnel au diamètre du jet [3, 9,15,25]

$$\bar{d} = k\, d_J \qquad (5)$$

En se plaçant dans des conditions expérimentales où le jet a une longueur maximale ($u_N = u_{max}$), Christiansen et Hixson [3] déduisent $k = 1{,}92$ de l'observation directe des ondes dans le jet et $k = 2{,}07$ de la mesure du diamètre des gouttes. Ils proposent une corrélation graphique que l'on peut mettre [26] sous la forme :

$$(6) \quad \begin{cases} \dfrac{\bar{d}}{\Phi} = 2{,}07 \dfrac{1}{0{,}485\ Eo + 1} & \text{pour } Eo < 0{,}615 \\[2ex] \dfrac{\bar{d}}{\Phi} = 2{,}07 \dfrac{1}{1{,}51\ Eo^{1/2} + 0{,}12} & \text{pour } Eo > 0{,}615 \end{cases}$$

où $Eo = \dfrac{g\Delta\rho}{\sigma}$ est le nombre d'Eotvos.

I.43 Résultats expérimentaux

Les photographies (figure 4) font apparaître que les gouttes sont peu déformées et peuvent être considérées comme sphériques. Toutefois, pour éviter toute erreur de distorsion, seul le diamètre vertical a été mesuré.

Dans tous les cas, nous avons constaté qu'il existe une distribution de tailles, variable avec les débits. Cette distribution est normale comme l'ont signalé déjà d'autres auteurs [9, 12] et comme le montrent les résultats typiques de la figure 5 obtenus sur le couple 8 (Heptane-DMSO) ; on notera que l'axe des ordonnées est gradué suivant l'échelle de Gauss (papier galtonien).

Pour chaque couple de liquides, nous avons constaté que le débit de la phase continue est sans influence sur la taille moyenne (figure 6).

Garwin et Smith [5] aboutissent à des conclusions identiques avec le couple Benzène - Eau alors que Letan et Kehat [10] rapportent que pour un débit donné de phase dispersée (kérosène) la taille des gouttes croît considérablement et varie sensiblement avec la hauteur dans la colonne, lorsque le débit de phase continue (eau) dépasse une certaine valeur ; on notera que leurs expériences ont été menées dans une colonne longue de 195 cm et avec des vitesses d'injection u_N élevées variant entre 33 et 188 cm/s.

Nous avons donc tracé la courbe de variation du diamètre moyen des gouttes en fonction de la vitesse d'injection u_N de la phase dispersée, proportionnelle au débit de la phase dispersée U_D $\left(u_N = \frac{4U_D}{N\pi\Phi^2} \right)$.

La figure 7 présente un exemple de ces courbes obtenues avec le couple 1 (kérosène - eau) pour quatre plateaux perforés différents. On remarque que pour un plateau donné, aux faibles et aux forts débits, la taille est sensiblement constante. Chacun de ces paliers correspond à un mode de formation : le "goutte-à-goutte" pour les faibles débits, présentant une faible distribution de tailles, le "jet" pour les forts débits, présentant une distribution de tailles plus étendue. Entre les deux, apparaît une zone de transition où le mode de formation n'est pas bien défini. L'allure de ces courbes est analogue à celles obtenues par Garwin et Smith [5] .

On notera que la relation (2) conduit, pour des vitesses d'injection voisines de zéro, à des diamètres de gouttes portés sur la figure 7 en bon accord avec les diamètres obtenus à u_N faible. D'autre part, la relation (4) conduit à des vitesses de formation des jets très compatibles avec nos résultats.

Pour les couples 8 et 9 (Heptane - DMSO sans et avec benzène comme soluté), la taille des gouttes n'est pas constante dans le régime en jet lorsque la vitesse u_N augmente (figures 6 et 8). Pour ces couples, la vitesse de formation des jets calculée par (4) est faible et de ce fait, l'intervalle décrit est très grand, u_N atteignant $5\ u_J$.

I.44 Corrélation proposée pour la taille moyenne des gouttes obtenues par rupture de jets

Pour les treize couples de liquides étudiés autres que les couples 8 et 9, la courbe de variation de $\overline{d}$ en fonction de u_N présente un palier (figure 7). Le rapport de la taille moyenne des gouttes correspondant à ce palier au diamètre Φ des trous du plateau est donné sur le tableau 3 et porté sur la figure 9 en fonction du nombre d'Eotvos. Pour les couples 8 et 9, nous avons porté la valeur correspondant au minimum de $\overline{d}$. La figure 9 montre que le rapport $\overline{d} / \Phi$ décroît linéairement lorsque le nombre d'Eotvos croît de 0,02 à 1,70. Dans ce large intervalle, nos résultats sont bien représentés par la relation empirique :

$$\frac{\overline{d}}{\Phi} = 2{,}06\ (1 - 0{,}185\ Eo) \qquad (7)$$

qui est l'équation de la droite des moindres carrés passant par les points expérimentaux. Nous avons également porté sur la figure (traits en tirés) la relation (6) de Christiansen et Hixson [3] . On constate que si l'accord avec nos résultats est bon aux très faibles valeurs de Eo, il n'en est plus de même lorsque Eo augmente. On peut expliquer cet écart par le fait que ces auteurs ont établi leur corrélation en formant les gouttes à l'aide d'un ajutage unique pour $u_N = u_{max}$; les gouttes ainsi obtenues ont donc une taille minimale. Au contraire, nos mesures sont faites avec un plateau perforé fournissant de multiples jets, chacun ayant une longueur propre puisque la vitesse u_N n'est pas rigoureusement la même dans tous les trous et égale à u_{max} . L'ensemble de ces jets ne peut donc fournir qu'une valeur du diamètre moyen supérieure à celle prédite par ces auteurs.

La relation (7) proposée n'est valable qu'en l'absence de transfert de matière. Cependant, les mesures effectuées en présence de transfert de matière (voir 3e partie) ont montrées que la présence d'un soluté n'a qu'une faible influence sur la taille des gouttes si le transfert a lieu de la phase continue vers la phase dispersée. Par contre, si le soluté est transféré des gouttes vers la phase continue, les gouttes coalescent rapidement et ne sont plus sphériques ni reproductibles. D'autres auteurs [2, 13] ont été conduits à des résultats analogues.

I.5 VITESSE DE DEPLACEMENT D'UNE GOUTTE UNIQUE V_r^∞

Pour chaque couple de liquides, nous avons étudié la variation de la vitesse de déplacement d'une goutte unique V_r^∞ , en milieu infini immobile, en fonction de son diamètre d . La figure 10 présente les résultats relatifs à cinq couples étudiés.

Cependant, lorsqu'il n'est pas possible de mesurer cette vitesse (phase continue opaque par exemple) on peut la calculer avec une bonne précision à l'aide des relations citées par Vignes [24] :

a) Pour une phase continue peu visqueuse et une forte tension interfaciale ($P = \rho_C \sigma^3 / g\Delta\rho\mu_C^4$ compris entre 10^7 et 10^{11}) la courbe de variation de la vitesse passe par un maximum pour $d_M = \sqrt{2}\left(\frac{\sigma}{g\Delta\rho}\right)^{1/2}$. Apparaissent deux régimes qui sont assez bien décrits par les relations :

- régime intermédiaire :

$$V_r^\infty = \frac{d}{4,2}\left(\frac{g\Delta\rho}{\rho_C}\right)^{2/3}\left(\frac{\rho_C}{\mu_C}\right)^{1/3}\left(1 - \frac{g\Delta\rho}{6\,\sigma}d^2\right) \qquad (8)$$

- régime d'Eotvos : $d > d_L$, diamètre au-delà duquel V_r^∞ est constante :

$$V_r^\infty = 1,53\left(\frac{g\Delta\rho\sigma}{\rho_C^2}\right)^{1/4} \qquad (9)$$

b) Pour une phase continue visqueuse ($P < 10^6$), les gouttes ont la même vitesse terminale que les sphères rigides équivalentes :

$$Re > 1 \qquad V_r^\infty = \frac{d}{4,2}\left(\frac{g\Delta\rho}{\rho_C}\right)^{2/3}\left(\frac{\rho_C}{\mu_C}\right)^{1/3} \qquad (10)$$

Sur la figure 10, on a également tracé les courbes de variation de V_r^∞ calculées d'après les relations précédentes. On constatera que l'accord avec les valeurs expérimentales est satisfaisant.

I.6 HYDRODYNAMIQUE EN REGIME PERMANENT

I.61 Variation du taux de rétention en fonction du débit des deux phases

La figure 11 représente à titre d'exemple les courbes de variation du taux de rétention β en fonction des débits de la phase continue U_C et de la phase dispersée U_D obtenues avec le couple 17 (Ethylène glycol - Heptane), le glycol étant dispersé. Chaque courbe correspond aux variations de β en fonction de U_C à U_D constant.

Le réseau de courbe montre que pour un couple de débits (U_C, U_D) deux types d'écoulement peuvent exister : le lit lâche avec un faible taux de rétention et le lit dense avec un taux de rétention élevé. On remarquera que si, l'un des débits étant maintenu constant, on augmente l'autre, le taux de rétention augmente en lit lâche et diminue en lit dense.

Les deux régimes se confondent au point d'engorgement : pour chaque valeur de U_D , l'engorgement a lieu pour une valeur de U_C au-delà de laquelle la colonne ne fonctionne plus de façon stable, et vice-versa.

Le taux de rétention de 0,93 a été obtenu alors que la limite supérieure obtenue pour des sphères rigides de taille uniforme (empilement hexagonal compact) est 0,74 ; on peut attribuer ce fait à la non-uniformité de la taille des gouttes ainsi qu'à leur déformabilité.

Dix-huit réseaux de courbes semblables ont été obtenus pour quinze couples de liquides et plusieurs plateaux perforés conduisant à des tailles de gouttes différentes, aussi bien en dispersant la phase légère que la phase lourde (tableau 4).

I.62 Variation du rapport V_r / V_r^∞

Pour chaque couple de liquides, nous avons étudié les variations du rapport V_r / V_r^∞ entre la vitesse relative des phases V_r définie par :

$$V_r = \frac{U_D}{\beta\Omega} + \frac{U_C}{(1 - \beta)\Omega} \qquad (11)$$

et la vitesse V_r^∞ d'une goutte unique évoluant en milieu infini et dont le diamètre serait égal au diamètre moyen $\bar{d}$ des gouttes dans la dispersion. Nous avons observé que V_r / V_r^∞ est une fonction du taux de rétention β dépendant des propriétés physiques des fluides en présence.

En lit dense, tout comme l'ont constaté Loutaty et Vignes [12] avec le couple kérosène - eau, le rapport V_r / V_r^∞ est une fonction linéaire de β pour les quinze couples étudiés (figures 12 à 16) :

$$V_r / V_r^\infty = p\ (1 - \beta) \qquad (12)$$

L'examen des figures 12 à 16 montre de plus que :

a) Pour un couple donné de liquides, la constante p est bien indépendante de la taille des gouttes. La figure 12 qui présente les résultats relatifs au couple 1 (kérosène - eau) obtenus avec quatre plateaux perforés différents indique en effet que les points expérimentaux se placent sensiblement sur une droite de pente 0,725, alors que la taille moyenne des gouttes a varié entre 1,2 mm (plateau 1) et 4,5 mm (plateau 5).

b) La constante p dépend, pour un couple donné de liquides , du sens de dispersion (gouttes montantes ou descendantes). La figure 13 montre en effet que pour le couple CCl_4 - Eau + 20 % Ethylène glycol, la constante p est différente suivant que la phase légère est dispersée (couple 12) ou continue (couple 20).

c) La figure 14 relative aux couples 3 (kérosène - Ethylène glycol) et 19 (CCl_4 - Ethylène glycol), caractérisés par une phase continue beaucoup plus visqueuse que la phase dispersée et la figure 15 relative aux couples 11 (Ethylène glycol - CCl_4) et 17 (Ethylène glycol - Heptane) caractérisés par une phase continue beaucoup moins visqueuse que la phase dispersée semblent indiquer que le facteur principal dont dépend p est le rapport des viscosités μ_C / μ_D .

Notons que dans les deux cas, un couple correspond à des gouttes montantes (3 ou 11) et l'autre à des gouttes tombantes (19 ou 17).

d) Enfin la présence d'un soluté en équilibre entre les deux phases, pour peu qu'il ne fasse pas trop varier le rapport μ_C / μ_D , n'affecte pas les résultats précédents, comme le montre la figure 16 relative aux couples 15 (DMSO - Heptane) et 16 (DMSO - Heptane + Benzène en équilibre).

L'ensemble des résultats obtenus avec les 15 couples de liquides étudiés est consigné dans le tableau 4 et présenté graphiquement sur la figure 17. Celle-ci fournit les variations de p (valeurs obtenues par la méthode des moindres carrés) en fonction du rapport μ_C / μ_D . On voit que pour $\mu_C / \mu_D < 0,2$, p est voisin de 1 et pour $\mu_C / \mu_D > 4$, p est sensiblement égal à 0,65.

Par contre, pour des taux de rétention faibles correspondant au lit lâche, les courbes de variation de V_r / V_r^∞ restent voisines de la courbe d'équation :

$$V_r / V_r^\infty = 1 - \beta^{0,6} \qquad (13)$$

comme le montre la figure 18. La relation (13) est valable pour des taux de rétention allant de 0 à 0,25 et suivant la valeur du rapport μ_C / μ_D ; les courbes se raccordent aux droites de pente p qui rendent compte des résultats relatifs à des taux de rétention supérieurs à 0,45 (figure 18).

Nos résultats sont donc notablement différents de ceux obtenus avec des systèmes gaz - solide ou liquide - solide pour lesquels l'hydrodynamique est assez bien décrite par la relation de Richardson et Zaki [21]:

$$V_r / V_r^\infty = (1 - \beta)^n \qquad (14)$$

où n varie entre 1,4 et 3,6 en fonction du nombre de Reynolds relatif à une goutte. La figure 19 présente un faisceau de courbes correspondant à plusieurs valeurs de n et la courbe d'équation $V_r / V_r^\infty = 1 - \beta^{0,6}$ passant par les points expérimentaux correspondant au lit lâche. On constate que pour n compris entre 2 et 3 la relation (14) donne des courbes assez voisines de la courbe d'équation (13). La différence avec nos résultats expérimentaux s'accentue quand β augmente et pour des taux de

rétention supérieurs à 0,30, les courbes correspondant à $n > 2$ sont toutes inférieures aux points expérimentaux. Il en est de même pour les relations semi-empiriques obtenues en fluidisation ou en sédimentation [17, 28].

Cette divergence peut provenir du fait que les interfaces liquide - liquide sont mobiles alors que les interfaces solide - gaz ou solide - liquide sont immobiles : le freinage dû à une dispersion de gouttes correspondant à un certain taux de rétention est toujours inférieur (ou égal) au freinage dû à une dispersion de grains solides correspondant à un taux de rétention identique. On notera de plus que le diamètre des grains solides utilisés en fluidisation ou en sédimentation est souvent beaucoup plus petit que celui des gouttes que nous avons formées. Enfin la déformabilité des gouttes peut également intervenir pour accentuer la différence entre les systèmes à solide dispersé et à liquide dispersé, surtout pour des taux de rétention élevés.

I.7 APPLICATION A L'EXTRAPOLATION DU DIAMETRE DE LA COLONNE

I.71 Résolution graphique

Les relations (13) et (12) caractéristiques des écoulements en lit lâche et en lit dense, valables respectivement pour $\beta < 0,25$ et $\beta > 0,45$, permettent de relier les paramètres hydrodynamiques U_D, U_C, Ω, V_r^∞ et β. Tenant compte de (11), on peut les écrire sous forme adimensionnelle, en introduisant les variables $X = U_D / \Omega V_r^\infty$ et $Y = U_C / \Omega V_r^\infty$:

$$\frac{X}{\beta} + \frac{Y}{1-\beta} = 1 - \beta^{0,6} \qquad (15)$$

et

$$\frac{X}{\beta} + \frac{Y}{1-\beta} = p\,(1-\beta) \qquad (16)$$

Dans les plans (X, Y), les courbes β = Cte sont des droites de pente $-\frac{1-\beta}{\beta}$ et d'ordonnées à l'origine $(1-\beta)(1-\beta^{0,6})$ et $p\,(1-\beta)^2$ respectivement ; ces droites sont tangentes auc courbes (E_1) et (E_2) carac-

térisées par :

$$\left(\frac{\delta X}{\delta \beta}\right)_{Y = Cte} = 0 \quad \text{ou} \quad \left(\frac{\delta Y}{\delta \beta}\right)_{X = Cte} = 0 \qquad (17)$$

conditions équivalentes caractérisant l'engorgement [11] . En combinant (15) et (17) d'une part, (16) et (17) d'autre part, on obtient les équations des courbes (E_1) et (E_d) sous forme paramétrique :

$$(E_1) \quad \begin{cases} X = \beta\,(\beta + 0{,}6\beta^{0,6} - 1{,}6\beta^{1,6}) \\ Y = (1-\beta)^2(1 - 1{,}6\beta^{0,6}) \end{cases}$$

et

$$(E_d) \quad \begin{cases} X = 2p\,\beta^2\,(1-\beta) \\ Y = p\,(1-\beta)^2(1-2\beta) \end{cases}$$

La courbe (E_1) et les courbes (E_d) correspondant à $p = 1$ et $p = 0{,}65$ sont tracées sur la figure 20. Pratiquement on utilisera plutôt la courbe (E_1) de la figure 21 et la courbe (E_d) de la figure 22 tracée dans le plan $(X/p, Y/p)$ où la représentation est unique.

D'un point L du plan (X, Y) situé au-dessous de la courbe (E_1) on peut mener une tangente (ou deux dans certains cas) à (E_1) : l'une correspond au lit lâche et a la plus forte pente ; l'autre correspondrait au lit dense mais n'a pas de sens puisque la relation (12) qui permet d'obtenir (E_1) n'est valable qu'en lit lâche pour $\beta < 0{,}25$. On déduira facilement le taux de rétention du lit lâche correspondant au point de fonctionnement L en lisant la valeur du paramètre β au point de contact ou en mesurant la pente qui est égale à $-\frac{1-\beta}{\beta}$.

De même, d'un point M du plan $(X/p, Y/p)$ situé au-dessous de la courbe (E_d), (et dans le premier quadrant puisqu'il s'agit d'un écoulement à contre-courant uniquement) on peut mener une tangente (ou deux dans certains cas) à (E_d) : l'une correspond au lit dense et a la pente la plus faible ; l'autre correspondrait au lit lâche mais n'a de sens physique que pour des taux de rétention compris entre 0,45 et 0,50. On déduira le taux de rétention correspondant au point de fonctionnement M en lisant le paramètre de contact ou de façon plus précise en mesurant l'ordonnée à l'origine de la tangente qui est égale à $(1-\beta)^2$.

Pour des écoulements en lit lâche dont les taux de rétention sont compris entre 0,25 et 0,45, aucune des deux relations (12) et (13)

n'est valable. On obtiendra une bonne approximation en prenant la valeur du taux de rétention obtenue à partir de la tangente menée à la courbe tracée de façon à joindre les courbes (E_1) et (E_d).

I.72 Exemple d'application

On utilise une colonne à pulvérisation de 1 m^2 de section en dispersant de l'heptane dans de l'eau (couple 6) à l'aide d'un plateau perforé dont les trous ont 0,095 cm de diamètre ; on se propose de calculer le taux de rétention obtenu en lit lâche et en lit dense en faisant circuler des débits de phase continue de 18 m^3/h et de phase dispersée de 36 m^3/h. Ces débits étant susceptibles de varier de ± 10 % , entre quelles valeurs variera le taux de rétention ?

a) On supposera que les gouttes se formant par rupture de jets ; la relation (7) conduit à

$$\frac{\bar{d}}{\Phi} = 2{,}07 - 2{,}48\Phi^2 \quad \text{soit} \quad \bar{d} = 0{,}194 \text{ cm}$$

D'après (8), on obtient $V_r^\infty = 59{,}2d\ (1 - 1{,}03d^2)$
soit pour $\bar{d} = 0{,}194$ cm $\quad V_r^\infty = 11$ cm/s
Comme le rapport $\mu_C / \mu_D = 2{,}40$, p sera pris égal à 0,66 . On en déduit que les points représentatifs du fonctionnement ont pour coordonnées :

$$L \begin{cases} X = 0{,}091 \\ Y = 0{,}0455 \end{cases} \quad \text{et} \quad M \begin{cases} X/p = 0{,}136 \\ Y/p = 0{,}069 \end{cases}$$

Sur la figure 21, la droite passant par L est tangente au point de paramètre $\beta = 0{,}14$. Sa pente est $- 6{,}02$, d'où l'on déduit $\beta = 0{,}143$. Sur la figure 22, la droite passant par M est tangente au point de paramètre $\beta = 0{,}60$. Son ordonnée à l'origine est 0,16 d'où l'on peut encore tirer $\beta = 0{,}60$.

Les valeurs extrêmes des taux de rétention seront obtenues lorsque le point représentatif sera en lit lâche, en

$$L_1 \begin{cases} X_1 = 0{,}100 \\ Y_1 = 0{,}050 \end{cases} \quad \text{ou} \quad L_2 \begin{cases} X_2 = 0{,}082 \\ Y_2 = 0{,}041 \end{cases}$$

et, en lit dense, en

$$M_1 \begin{cases} X_1/p = 0{,}152 \\ Y_1/p = 0{,}076 \end{cases} \quad \text{ou} \quad M_2 \begin{cases} X_2/p = 0{,}124 \\ Y_2/p = 0{,}062 \end{cases}$$

Les tangentes à (E_1) menées de L_1 et L_2 et à (E_d) menées de M_1 et M_2 permettent d'obtenir :

$$\beta_{11} = 0,17 \quad , \quad \beta_{12} = 0,12 \quad \text{et} \quad \beta_{d1} = 0,56 \quad , \quad \beta_{d2} = 0,64$$

I.8 CONCLUSION

Cette étude a montré que le lit dense est un écoulement stable pour des couples de liquides couvrant une large plage des propriétés physiques, pour des gouttes montantes ou des gouttes tombantes, en l'absence de transfert de matière.

Les corrélations obtenues à partir des résultats expérimentaux concernant la taille des gouttes et l'hydrodynamique de l'écoulement permettent de prévoir les caractéristiques du plateau perforé et le diamètre d'une colonne dans un calcul d'extrapolation. On choisira un plateau perforé tel que la formation des gouttes ait lieu en jet - afin qu'une variation du débit d'entrée de phase dispersée fasse peu varier la taille des gouttes - en prenant une surface ouverte $\pi N \Phi^2/4$ telle que $U_D / \pi N \Phi^2/4$ soit égal à 1,5 ou 2 U_J ; si on s'impose de plus un diamètre de goutte $\overline{d}$, la relation (7) conduit à Φ et on obtient facilement N . Le diamètre de la colonne peut être prévu grâce à la relation (12) et le fonctionnement hydrodynamique à l'aide de la procédure explicitée ci-dessus.

La hauteur de la colonne sera fixée par des considérations d'efficacité du transfert de matière comme nous le verrons dans la 3e partie.

I.9 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[1] BAUERLE G.L., ALHERT R.C., Ind. Eng. Chem., Proc. Des. Dev. 4, 1965, 225

[2] BAYENS C.A., Ph.D. Thesis, The John Hopkins Univ., Baltimore, 1967

[3] CHRISTIANSEN R.M., HIXSON A.N., Ind. Eng. Chem., 49, 1957, 1017

[4] FUNIJAWA K., MARUYAMA T., NAKAIKE Y., Kagaku Kikai, 21, 1957,21

[5] GARWIN L., SMITH B.P., Chem. Eng. Prog., 49, 1953, 591

[6] HARKINS W.D., BROWN F.E., J. Amer. Chem. Soc., 41, 1919, 499

[7] HAYNES L.G., HIMMELBLAU D.M., SCHECHTER R.S., Ind. Eng. Chem., Proc. Des. Dev., 7, 1968; 508

[8] HAYWORTH C.B., TREYBAL R.E., Ind. Eng. Chem., 42, 1950, 1174

[9] KEITH F.W., HIXSON A.N., Ind. Eng. Chem., Proc. Des. Dev., 47, 1955, 258

[10] LETAN R., KEHAT E., A.I.Ch.E. Journal, 13, 1967, 443

[11] LOUTATY R., Thèse Doctorat, Univ. de Nancy, 1968

[12] LOUTATY R., VIGNES A., Chimie et Ind.-Génie Chimique, 101, 1969, 231

[13] MEISTER B.J., SCHEELE G.F., A.I.Ch.E. Journal, 14, 1968, 9

[14] MEISTER B.J., SCHEELE G.F., A.I.Ch.E. Journal, 14, 1968, 15

[15] MEISTER B.J., SCHEELE G.F., A.I.Ch.E. Journal, 13, 1967, 682

[16] NULL H.R., JOHNSON H.F., A.I.Ch.E. Journal, 4, 1958, 273

[17] OLIVER D.R., Chem. Eng. Sci., 15, 1961, 230

[18] RAO E.V.L., KUMAR R., KULOOR N.R., Chem. Eng. Sci., 21, 1966, 867

[19] RAYLEIGH, Proc. London Math. Soc., 10, 1879, 4

[20] RYAN J.T., Ph.D. Thesis, Univ. of Missouri, 1966

[21] RICHARDSON J.F., ZAKI W.N., Trans. Inst.,Chem. Eng., 32, 1954, 35

[22] SAWISTOWSKI H., Liquid-liquid Symp., Prague, 1970

[23] SMITH S.W.J., MOSS H., Proc; Roy. Soc., London, A93, 1917, 373

[24] VIGNES A., Chimie et Ind.-Génie Chimique, 93, 1965, 127 et 179

[25] TOMOTIKA S., Proc; Roy; Soc;, London; A146, 1934, 322

[26] TREYBAL R.E., Liquid extraction, McGraw Hill Co., 1963, 466

[27] WOODWARD T., Chem. Eng. Prog., 57, 1961, 52

[28] ZENZ F.A., Petr. Refiner, 36, 1957, 147

DEUXIEME PARTIE

HYDRODYNAMIQUE D'UNE COLONNE A PULVERISATION EN REGIME TRANSITOIRE - REGULATION

II.1 Résumé

II.2 Introduction

II.3 Réponse à une perturbation laissant v_D constant

II.4 Réponse à une perturbation faisant varier v_D

II.5 Conclusions et principe de régulation

II.1 RESUME

Les trois paramètres de fonctionnement d'une colonne à pulvérisation sont les débits d'entrée et de sortie de la phase lourde et le débit d'entrée de la phase légère. Nous présentons les résultats de l'étude des réponses du lit dense à des variations d'un de ces paramètres, les deux autres étant maintenus constants. Une interprétation simple des résultats expérimentaux est proposée.

Ces résultats permettent d'envisager un principe de régulation d'une colonne à pulvérisation fonctionnant en lit dense que la phase dispersée soit la phase lourde ou la phase légère.

II.2 INTRODUCTION

La connaissance de la dynamique de la construction du lit dense et de ses variations de hauteur en fonction des variations des débits d'entrée ou de sortie des deux phases est nécessaire pour concevoir la régulation d'une colonne fonctionnant en lit dense.

En effet, comme le montre la figure 23, le lit dense n'occupe jamais toute la hauteur de la colonne comprise entre l'interface de coalescence des gouttes et le plateau perforé afin que les gouttes puissent se former librement. Il faudra donc étudier la construction du lit dense jusqu'à une longueur H et sa stabilisation autour de cette valeur pendant tout le fonctionnement de la colonne en compensant les effets des fluctuations de débit inévitables.

L'évacuation de la phase légère a lieu à niveau constant au sommet de la colonne, qu'elle soit dispersée ou continue. Le volume de liquide contenu dans la colonne étant constant, il en résulte que les deux débits d'entrée et les deux débits de sortie sont liés par :

$$U_{CE} + U_{DE} = U_{CS} + U_{DS} \qquad (1)$$

Le régime permanent est caractérisé par $U_{CE} = U_{CS}$ et $U_{DE} = U_{DS}$. La colonne a donc trois paramètres de fonctionnement indépendants : le débit d'entrée de la phase légère et les débits d'entrée et de sortie de la phase lourde. La quantité de phase dispersée présente dans la colonne sous forme de gouttes est égale à :

$$\mathcal{V}_D = \left(H\beta_d + (L - H)\,\beta_1\right)\,\Omega \qquad (2)$$

les taux de rétention β_d et β_1 étant indépendants du niveau de l'interface lit lâche - lit dense [1]. Cette quantité restera constante tant que l'on maintient les débits d'entrée et de sortie d'une phase égaux (d'après la relation (1) les débits d'entrée et de sortie de l'autre le seront également).

L'étude dynamique de la colonne à pulvérisation peut être menée en mesurant la variation de la hauteur du lit dense en fonction du temps en réponse à une variation ΔU d'un des paramètres, les deux autres restant constants. Le tableau ci-dessous recense l'ensemble des cas possibles que la phase dispersée soit la phase légère (↑) ou la phase lourde (↓):

	Colonne à gouttes montantes	Colonne à gouttes tombantes
Relation (1)	$U_{DS} = U_{CE} + U_{DE} - U_{CS}$	$U_{CS} = U_{CE} + U_{DE} - U_{DS}$
Variation de U_{DE}	$U_{CE} = U_{CS}$ restent constants $\mathcal{V}_D$ = Cte 1	U_{CE} et U_{DE} restent constants $\mathcal{V}_D$ varie 2
Variation de U_{CE}	U_{DE} et U_{CS} restent constants $\mathcal{V}_D$ varie 3	$U_{DE} = U_{DS}$ restent constants $\mathcal{V}_D$ = Cte 4
Variation de U_{DS}		U_{DE} et U_{CE} restent constants $\mathcal{V}_D$ varie 5
Variation de U_{CS}	U_{DE} et U_{CE} restent constants $\mathcal{V}_D$ varie 6	

La relation (1) permet de déterminer le débit de sortie de la phase légère qui n'est pas un paramètre de fonctionnement comme nous l'avons vu. Il apparaît donc six cas possibles :

- Deux cas équivalents où $\mathcal{V}_D$ reste constant : 1 et 4

- Quatre cas où $\mathcal{V}_D$ varie : les cas 3 et 6 et les cas 2 et 5 qui sont équivalents également comme nous le verrons ci-dessous.

Dans l'étude successive de ces deux sortes de possibilités, on s'en tiendra toujours à des variations de débits d'amplitude suffisamment faible pour que les débits restent compatibles avec l'existence du lit dense et ne conduisent pas à un engorgement de la colonne. Nous avons utilisé la colonne L et les couples de liquides 1 (Kérosène - Eau), 3 (Kérosène - Ethylène glycol) et 13 (Eau - Kérosène) avec les plateaux perforés 1, 2, 3 et 5.

Remarque :

La pression P au fond de la colonne est donnée par

$$P = \rho_C gh + (L - H)g\left(\beta_1\rho_D + (1 - \beta_1)\rho_C\right) + H g\left(\beta_d\rho_D + (1 - \beta_d)\rho_C\right) + h'\rho_D g$$

Soit encore :

$$P = \rho_C gh + \rho_D gh' + \rho_C gL - \Delta\rho g\left(H(\beta_d - \beta_1) + L\beta_1\right)$$

Les trois premiers termes sont constants et le quatrième est proportionnel à la quantité de phase dispersée $\mathcal{V}_D$ présente sous forme de gouttes dans la colonne.

On pourra suivre directement les variations de $\mathcal{V}_D$ par la mesure de P.

II.3 REPONSE A UNE PERTURBATION LAISSANT $\mathcal{V}_D$ CONSTANT

Le tableau précédent indique que $\mathcal{V}_D$ reste constant dans les cas 1 et 4 qui correspondent à une variation du débit d'entrée de phase légère, les débits d'entrée et de sortie de la phase lourde étant maintenus constants et égaux.

II.31 Calcul de la nouvelle position d'équilibre

A partir d'un régime permanent correspondant à une hauteur H_1 du lit dense et à des taux de rétention β_{11} et β_{d1} une variation échelon du débit de phase légère ΔU va conduire à un nouvel état d'équilibre correspondant à une hauteur du lit dense H_2 avec des taux de rétention β_{12} et β_{d2}. Le volume $\mathcal{V}_D$ de la phase dispersée présente sous forme de gouttes dans la colonne étant constant, la nouvelle position d'équilibre sera telle que :

$$\beta_{d1} H_1 + \beta_{11} (L - H_1) = \beta_{d2} H_2 + \beta_{12} (L - H_2) \qquad (3)$$

Soit

$$H_2 = \frac{\beta_{d1} - \beta_{11}}{\beta_{d2} - \beta_{12}} H_1 + \frac{\beta_{11} - \beta_{12}}{\beta_{d2} - \beta_{12}} L \qquad (4)$$

La différence entre les deux positions initiale et finale vaut donc :

$$H_2 - H_1 = \frac{(\beta_{d1} - \beta_{d2}) - (\beta_{11} - \beta_{12})}{\beta_{d2} - \beta_{12}} H + \frac{\beta_{11} - \beta_{12}}{\beta_{d2} - \beta_{12}} L \qquad (5)$$

II.32 Résultats expérimentaux

Nous avons mesuré la variation $H(t)$ de la hauteur du lit dense provoquée par une variation ΔU du débit d'entrée de la phase dispersée (cas n° 1, gouttes montantes) ou du débit d'entrée de la phase continue (cas n° 4, gouttes tombantes). Au bout d'un temps allant de 2 à 8 mn, la hauteur du lit dense se stabilise à une nouvelle position d'équilibre H_2. Les figures 24 et 25 pour le cas n° 1, la figure 26 pour le cas n° 4 présentent quelques courbes de variations de $H - H_1$. On constate que la

forme de la courbe ainsi que la différence $H_2 - H_1$ entre les deux positions d'équilibre dépendent de la hauteur initiale du lit dense H_1 .

Nous avons représenté également la différence $H_2 - H_1$ en fonction de H_1 (figure 27) pour des conditions identiques. On obtient des droites d'équation

$$H_2 - H_1 = aH_1 + b \qquad (6)$$

comme le prévoit la relation (5).

Dans le tableau 5 où sont rassemblés l'ensemble de nos résultats nous avons porté les valeurs des paramètres a et b des droites obtenues à partir des points expérimentaux et celles calculées d'après la relation (5), les taux de rétention ayant été mesurés en régime permanent. On constate un accord satisfaisant.

II.33 Interprétation des courbes de variation $H(t) - H_1$

Moyennant certaines hypothèses, on peut retrouver la forme des courbes de variation $H(t) - H_1$. Nous présentons le calcul dans le cas n° 1 où la phase légère est dispersée et la transposition au cas n° 4, où la phase lourde est dispersée, est très aisée. Partons d'un régime permanent (U_{DE}, $U_{CE} = U_{CS}$, H_1) et faisons une variation $U_{DE}(1) \rightarrow U_{DE}(2)$ au temps t = 0 :

- 1e phase : nous allons supposer que la variation de U_{DE} va se "propager" dans la colonne à la vitesse moyenne des gouttes V_D. Ainsi, dans une première phase, le lit dense ayant une hauteur H(t) va avoir un taux de rétention (supposé uniforme) β_{d1} tandis que le lit lâche sera divisé en deux parties (voir figure 28): l'une de hauteur x(t) avec un taux de rétention de β_{12} et l'autre de hauteur (L - H - x) avec un taux de rétention β_{11} (ces taux de rétention supposés uniformes). Nous prendrons évidemment :

$$x(t) = V_D t \qquad (7)$$

et V_D vitesse moyenne des gouttes sera prise égale à la moyenne entre

$$V_{D1} = \frac{U_{DE}(1)}{\beta_{11}\Omega} \quad \text{et} \quad V_{D2} = \frac{U_{DE}(2)}{\beta_{12}\Omega}$$

d'ailleurs assez peu différentes.

Puisque $\mathcal{V}_D$ reste constant :

$$H\beta_{d1} + (L - H - x)\beta_{11} + x\beta_{12} = H_1\beta_{d1} + (L - H_1)\beta_{11}$$

Soit :
$$H = x\,\frac{\beta_{11} - \beta_{12}}{\beta_{d1} - \beta_{11}} + H_1 \qquad (8)$$

D'où d'après (7) :
$$H(t) = V_D\,\frac{\beta_{11} - \beta_{12}}{\beta_{d1} - \beta_{11}}\,t + H_1 \qquad (9)$$

Cette première phase se termine lorsque $x = L - H$ c'est-à-dire au temps t_m donné par :

$$t_m = \frac{L - H_1}{V_D}\,\frac{\beta_{d1} - \beta_{11}}{\beta_{d1} - \beta_{12}} \qquad (10)$$

ce qui correspond à une hauteur H_m du lit dense :

$$H_m = (L - H_1)\,\frac{\beta_{11} - \beta_{12}}{\beta_{d1} - \beta_{12}} + H_1 \qquad (11)$$

- <u>2e phase</u> : pour $t > t_m$, nous allons raisonner de façon identique ; cette fois-ci, le lit lâche a un taux de rétention β_{12} et le lit dense est divisé en deux zones : l'une de hauteur y a un taux de rétention β_{d2} et l'autre de hauteur $H - y$ un taux de rétention β_{d1} (voir figure 28). Cette fois-ci $y = V'_D\,t$ (12) avec V'_D vitesse moyenne des gouttes qui sera prise égale à la moyenne entre :

$$V'_{D1} = \frac{U_{DE}(1)}{\beta_{d1}\Omega} \quad \text{et} \quad V'_{D2} = \frac{U_{DE}(2)}{\beta_{d2}\Omega}$$

(valeurs assez voisines là aussi). Ecrivons de même que précédemment, que le volume $\mathcal{V}_D$ est constant :

$$(H - y)\beta_{d1} + y\beta_{d2} + (L - H)\beta_{12} = H_1\beta_{d1} + (L - H_1)\beta_{d1}$$

Ce qui conduit d'après (12) à :

$$H(t) = H_1 + (L - H_1)\,\frac{\beta_{11} - \beta_{12}}{\beta_{d1} - \beta_{12}} - V'_D\,\frac{\beta_{d2} - \beta_{d1}}{\beta_{d1} - \beta_{12}}\,(t - t_m) \qquad (13)$$

ou encore d'après (11) :
$$H(t) = H_m - V'_D\,\frac{\beta_{d2} - \beta_{d1}}{\beta_{d1} - \beta_{12}}\,(t - t_m) \qquad (14)$$

et ainsi jusqu'au temps $t = t_M$ où $y = H$; alors le régime est considéré comme établi :

$$t_M = t_m + \frac{H_2}{V'_D} = \frac{L - H_m}{V_D} + \frac{H_2}{V'_D} \qquad (15)$$

avec H_M, hauteur du lit dense à l'équilibre, valant :

$$H_M = H_2 = H_1 \frac{\beta_{d1} - \beta_{11}}{\beta_{d2} - \beta_{12}} + L \frac{\beta_{11} - \beta_{12}}{\beta_{d2} - \beta_{12}} \qquad (16)$$

On notera que la relation (16) est identique à la relation (4) obtenue plus simplement ci-dessus.

- Comparaison avec les résultats expérimentaux : nous avons tracé les courbes $H(t)$ calculées à l'aide des taux de rétention mesurés et nous avons porté sur ces graphes les points expérimentaux correspondants. Sur la figure 29, nous avons représenté $H(t) - H_1$ pour plusieurs H_1 et on retrouve l'évolution des formes de courbes constatées expérimentalement. L'accord avec les points expérimentaux est bon pour des temps longs.

On peut facilement expliquer la divergence entre les points expérimentaux et les courbes calculées pour des temps courts ; nous avons supposé dans le calcul que les gouttes se déplaçaient toutes avec la vitesse moyenne de la phase dispersée et que la variation de U_{DE} se propageait comme un "front" ; nous avons négligé ainsi la dispersion axiale de la phase dispersée provenant de la distribution des vitesses des gouttes dans la colonne. Ainsi, les pics prévus par la théorie sont considérablement "arrondis" et l'équilibre est atteint "tangentiellement" au bout d'un temps beaucoup plus long.

II.4 REPONSE A UNE PERTURBATION FAISANT VARIER $\mathcal{V}_D$

II.41 Les variations ΔU de débit correspondant aux cas 2, 3, 5 et 6 provoquent une variation du volume $\mathcal{V}_D$ et

$$\frac{d\,\mathcal{V}_D}{dt} = \pm\,\Delta U \qquad (17)$$

(signe + pour les cas 2 et 6 et signe - pour les cas 3 et 5)

qui s'écrit encore :

$$\pm \Delta U = \Omega \frac{d}{d\,t} \left(H\beta_d + (L - H)\beta_1 \right) \qquad (18)$$

Les variations de débit étant assez faibles et les taux de rétention en lit lâche et en lit dense étant indépendants de la hauteur H en régime permanent comme l'ont montré Bauerle et Alhert [1] et Loutaty [3], il est raisonnable de supposer que β_d et β_1 sont indépendants de H et de t ; il en découle :

$$\frac{dH}{dt} = \frac{\pm \Delta U}{\Omega(\beta_d - \beta_1)} \qquad (19)$$

Le lit dense se construit ou se détruit linéairement en fonction du temps à une vitesse proportionnelle à la variation de débit ΔU .

II.42 Résultats expérimentaux

Les résultats obtenus dans les conditions des cas 5 et 6 sont en excellent accord avec les prévisions comme le montrent les figures 30 et 31. Les courbes $H(t)$ obtenues[x] sont des droites dont la pente est proportionnelle à ΔU :

$$\frac{dH}{dt} = c \;\; \Delta U \qquad (20)$$

Le tableau 6 rassemble l'ensemble de nos résultats et montre qu'il existe un bon accord entre la différence $\beta_d - \beta_1$, β_d et β_1 étant les taux de rétention mesurés en régime permanent et la valeur de $1/c\Omega$ obtenues d'après les mesures de $H(t)$ comme le prévoit la relation (19).

On notera la parfaite symétrie entre la construction du lit dense ($\Delta U > 0$ pour les cas 2 et 6 et $\Delta U < 0$ pour les cas 3 et 5) et sa destruction ($\Delta U < 0$ pour les cas 2 et 6 et $\Delta U > 0$ pour les cas 3 et 5).

II.43 Généralisation

Nous venons de voir la réponse à une variation de débit d'amplitude ΔU constante. Si, au cours du temps, le débit d'entrée de phase légère est maintenu constant et si les débits d'entrée et de sortie de la phase lourde fluctuent autout d'une certaine valeur, la variation de la hauteur du lit dense entre deux instants t_1 et t_2 sera d'après (19) :

x Les décrochements des droites $H(t)$ proviennent de l'existence des vannes à tiroir dont la section est supérieure à celle de la colonne.

$$H(t_2) - H(t_1) = \frac{1}{\Omega(\beta_d - \beta_1)} \int_{t_1}^{t_2} \pm \Delta U \, dt \qquad (21)$$

ΔU représentant la différence entre les débits d'entrée et de sortie de la phase lourde, β_d et β_1 les taux de rétention en régime permanent correspondant au débit d'entrée de phase légère et au débit moyen d'entrée de phase lourde. Le système "intégre" si bien que même un léger déséquilibre entre les débits d'entrée et de sortie de la phase lourde peut occasionner de grandes variations de la hauteur du lit dense et éventuellement sa destruction si l'interface lit lâche - lit dense atteint le plateau perforé provoquant de fortes coalescences à la formation des gouttes.

II.5 CONCLUSIONS ET PRINCIPE DE REGULATION

L'étude des deux séries de cas permet de dégager les conclusions suivantes :

- une variation du débit d'entrée de phase légère conduit à une nouvelle hauteur du lit dense et à deux nouvelles valeurs du taux de rétention liées par la relation (4) ; la variation de H au cours du temps n'est ni monotone ni linéaire (cas n° 1 et 4).

- une différence entre les débits de sortie et d'entrée de phase lourde provoque une variation linéaire de la hauteur du lit dense (cas n° 2, 3, 5 et 6).

On peut donc en déduire un principe de régulation simple :

a) Fixer les débits d'entrée des deux phases à la valeur désirée et les maintenir constants par une boucle de régulation.

b) Construire le lit dense et le stabiliser à la hauteur H en jouant sur le débit de sortie de phase lourde.

La lecture du niveau de l'interface lit lâche - lit dense peut

être faite soit à l'aide de mesure de pression, soit à l'aide de mesure de conductivité électrique si les liquides le permettent.

Remarque :

On notera que les résultats et leur interprétation justifient notre hypothèse supposant que le taux de rétention en lit lâche et en lit dense est uniforme le long de la colonne. Ils pourraient être différents si β_d ou β_l dépendaient de la hauteur comme l'ont observé certains auteurs [2].

II.6 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[1] BAUERLE G.L., ALHERT R.C., Ind. Eng. Chem., Proc. Des. Dev. 4; 1965, 225

[2] LETAN R., KEHAT E., A.I.Ch.E. Journal, 13, 1967, 305

[3] LOUTATY R., Thèse Doctorat és-sciences Univ. de Nancy, 1968

TROISIEME PARTIE

TRANSFERT DE MATIERE ET DISPERSION AXIALE DANS UNE COLONNE A PULVERISATION

III.1 Résumé

III.2 Introduction

III.3 Techniques expérimentales

III.4 Existence du lit dense en présence de transfert de matière

III.5 Transfert de matière et dispersion axiale

III.6 Conclusion

III.7 Références bibliographiques

III.1 RESUME

On présente les résultats d'une étude du transfert de matière dans deux colonnes à pulvérisation liquide - liquide fonctionnant en lit lâche et en lit dense avec les ternaires Heptane - DMSO - Benzène et Heptane - Eau - Acétone.

L'existence de l'écoulement en lit dense dépend essentiellement du sens dans lequel s'effectue le transfert de matière. Lorsque celui-ci a lieu de la phase continue vers la phase dispersée, le lit dense existe d'une façon stable. Au contraire, une coalescence importante intervient entre les gouttes lorsque le transfert a lieu dans l'autre sens et le lit dense n'existe pas. L'efficacité du transfert de matière est plus élevée en lit dense qu'en lit lâche, la hauteur apparente globale d'un plateau théorique étant environ deux fois plus grande en lit lâche qu'en lit dense.

Des profils de concentration de la phase continue ont été tracés en lit lâche et en lit dense et interprétés à l'aide du modèle de l'écoulement piston avec dispersion axiale. Les deux paramètres de ce modèle, qui sont le nombre d'unités de transfert et le critère de Péclet, ont permis le calcul des coefficents de transfert de matière et de dispersion axiale ; ceux-ci ont été reliés à la vitesse relative des deux phases, grandeur caractéristique de l'hydrodynamique.

III.2 INTRODUCTION

Nous avons montré dans la première partie que le lit dense est caractérisé par une faible vitesse relative des deux phases et un taux de rétention de la phase dispersée élevé, offrant ainsi une surface d'échange beaucoup plus grande qu'en lit lâche. L'étude du transfert de chaleur de Loutaty, Vignes et Le Goff [14] a montré de plus que la dispersion axiale qui abaisse considérablement l'efficacité des colonnes en lit lâche est nettement plus faible en lit dense.

Mais en extraction liquide - liquide, le fonctionnement d'une colonne en lit dense se heurte au problème de l'existence même du lit dense. Greskovich [5] est le seul auteur à avoir signalé dans une courte communication que le lit dense peut exister dans certaines conditions d'une façon stable en présence de transfert de matière. Conformément à ses conclusions, nous nous proposons de montrer que le sens du transfert a une influence déterminante sur l'existence du lit dense, et nous préciserons son domaine d'existence.

Nous rapportons également ici les résultats obtenus en transfert de matière dans les colonnes à pulvérisation A et B en utilisant les ternaires Heptane - Eau - Acétone et DMSO - Heptane - Benzène. Tout comme ceux obtenus par Loutaty, Vignes et Le Goff [14] en transfert de chaleur, ils sont de deux sortes : les uns relatifs au transfert de matière proprement dit (coefficient de transfert de matière), les autres au mélangeage axial (coefficient de dispersion axiale).

III.3 TECHNIQUES EXPERIMENTALES

Les colonnes A et B ont été utilisées ainsi que les plateaux perforés 8, 11 et 12.

III.31 Prélèvements

Afin de déterminer le profil de concentration dans la phase continue tout le long de la colonne, des prélèvements ont été faits tous les 10 cm environ en 8 points différents dont l'un est situé au niveau du déversoir, juste sous l'interface phase continue - phase dispersée. Ces prélèvements ont été réalisés à l'aide de tubes en acier inox de diamètre intérieur 1 mm. Afin d'obtenir une concentration moyenne dans la section considérée, ils ont été bouchés à l'une de leurs extrémités et perforés en trois points comme le montre la figure 32. Leur extrémité extérieure est soudée à un embout d'aiguille hypodermique permettant de recueillir le liquide grâce à une seringue.

En lit lâche, la phase continue ainsi prélevée ne contenait que très peu de phase dispersée ; par contre, en lit dense, une quantité appréciable de phase dispersée était entraînée avec la phase continue. De meilleurs résultats ont été obtenus en traitant le tube pour le rendre mouillable par la phase continue et en recueillant très lentement le liquide dans la seringue. Cependant, certains prélèvements contenant plus de 15 % de phase dispersée ont dû être rejetés. Le prélèvement au niveau de l'interface a été effectué avec un soin particulier et répété plusieurs fois. Enfin, des prélèvements étaient également effectués à l'entrée et à la sortie de la colonne de chacune des phases.

III.32 Moyens d'analyse

Deux ternaires ont été étudiés et pour chacun d'eux une méthode d'analyse a été mise en oeuvre. Pour le premier, constitué d'Heptane, de DMSO (contenant 6 % d'Eau pour accroître sa sélectivité) et de Benzène comme soluté, l'analyse de chaque phase a été faite par chromatographie en phase gazeuse, le gaz vecteur étant l'hydrogène et la colonne étant impré-

gnée de Porapak. Le second ternaire, constitué d'Heptane, d'Eau et d'Acétone comme soluté, a été analysé par réfractométrie.

Les courbes d'équilibre ont été tracées à 20°C ; le coefficient de partage du premier ternaire est constant et vaut 0,538 (C_{DMSO} / $C_{Heptane}$ = 0,538) ; celui du second n'est pas constant et prend la valeur 0,09 aux faibles concentrations ($C_{Heptane}$ / C_{Eau}). On trouvera en annexe A III 1 des détails plus complets sur les méthodes d'analyse utilisées.

III.4 EXISTENCE DU LIT DENSE EN PRESENCE DE TRANSFERT DE MATIERE

III.41 Conditions d'existence du lit dense

La formation du lit dense, c'est-à-dire l'accumulation dans la colonne, des gouttes les unes contre les autres sans coalescer, résulte de la différence entre leur débit de formation et leur débit de coalescence à l'interface, lorsque la probabilité de coalescence entre elles est peu élevée. Le débit de formation des gouttes dépend du débit de phase dispersée U_D et du diamètre moyen des gouttes $\bar{d}$ qui est relié aux caractéristiques du plateau perforé et aux propriétés physiques des deux phases [21] . Le débit de coalescence à l'interface et la probabilité de coalescence des gouttes entre elles dépendent des débits, des propriétés physiques et des concentrations en soluté des deux phases, de la taille des gouttes $\bar{d}$, ainsi que de la géométrie de la colonne et de la mouillabilité de ses parois. En utilisant une colonne et un distributeur donnés, l'existence du lit dense pour un certain système ternaire ne dépend donc que des débits et des concentrations en soluté des deux phases.

Généralement, pour un couple de concentrations initiales des deux phases, nous avons fait varier les deux débits U_C et U_D sur une certaine plage : si le lit dense ne peut être construit pour aucun couple de débits, nous dirons qu'il n'existe pas pour le couple de concentrations considéré ; s'il peut être obtenu de façon stable sur toute la longueur de la colonne et pour plusieurs couples de débits, nous dirons qu'il existe pour le couple de concentrations initiales considéré. Pratiquement, très peu de cas intermédiaires (voir ci-dessous) entre ces deux cas bien dis-

tincts ont été rencontrés.

III. 42 Domaine d'existence du lit dense

Une étude systématique a été menée avec le ternaire Heptane - DMSO - Benzène, et ces résultats ont été confirmés par ceux obtenus sur le ternaire Heptane - Eau - Acétone ou sur d'autres ternaires [20] .

Les figures 33 et 34 montrent les domaines d'existence du lit dense relatifs au premier système. Sur ces figures, les coordonnées d'un point représentent la concentration en benzène des deux phases à leur entrée dans la colonne. Lorsque le point se situe sur la courbe d'équilibre, les deux phases entrent à l'équilibre et aucun transfert de matière n'a lieu. Les points blancs correspondent au domaine où le lit dense n'existe pas et les points noirs au domaine où il existe ; les cas d'incertitude ont été repérés par des points noirs et blancs.

- Colonne A (figure 33) : la phase légère est dispersée (Heptane - Benzène) et la phase lourde continue (DMSO - Benzène). Le lit dense existe quand le transfert a lieu de la phase continue vers la phase dispersée ; lorsque le transfert a lieu dans l'autre sens, le lit dense n'existe que dans un petit domaine au voisinage de la courbe d'équilibre. C'est une droite voisine de la droite de partage qui limite le domaine d'existence. Les deux photographies présentées sur la figure 35 montrent la différence d'aspect de la dispersion quand le transfert a lieu de la phase continue vers les gouttes ou en sens inverse.

- Colonne B (figure 34) : la phase lourde est dispersée (DMSO - Benzène) et la phase légère continue (Heptane - Benzène) ; le lit dense existe là encore quand le transfert a lieu de la phase continue vers la phase dispersée mais n'existe pas dans l'autre sens ; la courbe de partage limite dans ce cas le domaine d'existence.

III.43 Discussion

Des auteurs [9, 11] ont constaté que la vitesse de coalescence d'une goutte à une interface est augmentée lorsqu'un transfert de matière a lieu de la goutte vers le liquide environnant et réduite lorsque le transfert a lieu en sens inverse. Groothuis et Zuiderweg [8] aboutissent à une

conclusion identique au sujet de la coalescence des gouttes entre elles dans un mélangeur-décanteur et fournissent une interprétation qualitative de ce phénomène en faisant appel à l'effet Marangoni [7] ; la figure 36 en fournit une illustration. Dans le premier cas (figure 36 a), le gradient de concentration est dirigé de A vers B et C , ce qui provoque un gradient de tension interfaciale dirigé de B et C vers A (puisque pour la plupart des ternaires la tension interfaciale diminue lorsque la concentration en soluté augmente). Ce gradient de tension interfaciale provoque un écoulement de la phase continue dans le sens indiqué sur la figure 36 a. Le film qui sépare les gouttes se trouve ainsi renforcé et la coalescence est retardée ou empêchée. Dans le second cas (figure 36 b) les conclusions sont inversées. Par contre si la tension interfaciale croît avec la concentration la vitesse de coalescence est augmentée par un transfert de la phase continue vers les gouttes et retardée par un transfert en sens inverse comme l'ont montré les travaux de Mc Ferrin et Davison [16] .

Pour des colonnes à pulvérisation, divers auteurs [2, 3, 10, 23] ont observé que le sens du transfert de matière a une influence prépondérante sur la coalescence des gouttes et conseillent de disperser la phase solvant de façon que le transfert de matière ait lieu de la phase continue vers la phase dispersée ; Greskovich [5] aboutit également à une conclusion identique quant à l'existence du lit dense.

Il apparaît ainsi que l'existence du lit dense exige qu'on disperse la phase solvant. Néanmoins, dans certains cas (lavage, purification,...) où le gradient de concentration est très faible, le lit dense peut exister même si le transfert a lieu des gouttes vers la phase continue.

III.5 TRANSFERT DE MATIERE ET DISPERSION AXIALE

Pour étudier le mécanisme de transfert de matière, nous avons tracé les profils de concentration dans la phase continue tout le long de la colonne. Cette étude a été faite en lit lâche et en lit dense, le sens du transfert ayant toujours été de la phase continue vers la phase dispersée.

Les profils de phase continue présentent une discontinuité à l'entrée dans la colonne (figures 37 - 39) comme l'ont observé Geankoplis et Hixson [4] , Cavers et Ewanchyna [1] dans une colonne à pulvérisation et Gier et Hougen [5] dans une colonne à garnissage. De même, en transfert de chaleur, Letan et Kehat [12] et Loutaty, Vignes et le Goff [14] ont observé un saut de température.

Tous les auteurs sont d'accord pour attribuer cette discontinuité de concentration ou de température au mélangeage axial qui existe dans la colonne, dû à un ensemble de phénomènes hydrodynamiques (sillages de phase continue transportés par les gouttes, grands mouvements en retour de la phase continue,...) et l'interprètent par le modèle de l'écoulement piston avec dispersion axiale.

III. 51 Modèle de l'écoulement piston avec dispersion axiale dans la phase continue

Sleicher [24] ,Miyauchi et coll. [18,19] ont les premiers interprété les profils de concentration (ou de température) à l'aide du modèle de l'écoulement piston avec dispersion axiale qui rend compte des discontinuités observées. Dans les colonnes à pulvérisation, Cavers et Ewanchyna [1] et Loutaty, Vignes et le Goff [14] n'ont jamais observé de saut de concentration ou de température à l'entrée de la phase dispersée. N'ayant pu déterminer les profils de concentration dans la phase dispersée, nous admettrons comme eux que l'écoulement de la phase dispersée est piston, c'est-à-dire que les gouttes ont toutes le même temps de séjour dans les colonnes et que seule la phase continue subit une dispersion axiale.

Le modèle suppose principalement que la dispersion axiale peut être décrite par une loi analogue à celle de Fick et introduisant un coefficient de dispersion analogue à une diffusivité, que les deux phases s'écoulent à des vitesses uniformes, que le taux de rétention β, le diamètre moyen des gouttes $\overline{d}$, le coefficient de transfert k_C et le coefficient de dispersion axiale α_C sont constants tout le long de la colonne ; de même les concentrations sont supposées uniformes dans toute section de la colonne.

Les équations-bilans correspondant à chaque phase peuvent être

rendues adimensionnelles et prendre la forme bien connue [18] :

$$\begin{cases} \dfrac{d^2x}{d\xi^2} + P_C \dfrac{dx}{d\xi} - N_C P_C (x - y) = 0 & (1) \\[2ex] \dfrac{dy}{d\xi} - N_C r (x - y) = 0 & (2) \end{cases}$$

avec $x = \dfrac{C_{CE} - C_C}{C_{CE} - C_{DE}/m}$ (3) , $y = \dfrac{C_{CE} - C_D/m}{C_{CE} - C_{DE}/m}$ (4) , $\xi = z/L$ (5)

et $N_C = \dfrac{k_C a L \Omega}{U_C}$ (6) , $P_C = \dfrac{U_C L}{\Omega \alpha_C}$ (7) , $r = \dfrac{U_C}{m\, U_D}$ (8)

a étant l'aire spécifique de contact et valant donc $6\beta/\bar{d}$.

Les conditions aux limites dites de Danckwerts s'expriment ainsi :

$$\xi = 0 \quad \begin{cases} \dfrac{dx(0)}{d\xi} = 0 & (9) \\[2ex] y(0) = 1 & (10) \end{cases}$$

$$\xi = 1 \qquad \frac{dx(1)}{d\xi} = - P_C\, x(1) \qquad (11)$$

et permettent de résoudre complètement le système (1) (2) qui conduit aux solutions $\bar{x}(\xi)$ et $\bar{y}(\xi)$, N_C, P_C et r étant des paramètres comme il est montré en annexe.

III.52 Dépouillement des profils de concentration

Pour chaque manipulation, la mesure des concentrations d'entrée et de sortie de chaque phase permet d'écrire le bilan global :

$$U_C\, (C_{CE} - C_{CS}) = U_D\, (C_{DS} - C_{DE}) \qquad (12)$$

d'où l'on déduit le coefficient d'extraction défini par (8), soit :

$$r = \frac{C_{DS}/m - C_{DE}/m}{C_{CE} - C_{CS}} \qquad (13)$$

Sur le tableau 7, où figurent pour chaque manipulation, les débits et les concentrations d'entrée et de sortie de chaque phase, ainsi que le régime d'écoulement, nous avons comparé les valeurs de r calculées d'après (8) et

(13). Dans la plupart des cas considérés, l'écart est inférieur à 5 %, ce qui montre la validité de nos mesures.

Le paramètre r étant donné par la relation (13), à chaque couple de valeurs (N_C, P_C) correspond un couple de profils théoriques $\overline{x}(\xi)$ et $\overline{y}(\xi)$ solutions du système (1) (2) dont les expressions analytiques sont données en annexe A III 2. Connaissant C_{CE} et C_{DE}/m, on peut, pour chaque point des profils, calculer d'après (3) et (4) la valeur des variables adimensionnelles $x(\xi_i)$ et $y(\xi_i)$, ξ_i étant la cote réduite du point de prélèvement. A partir des points expérimentaux et d'un couple de valeurs (N_C, P_C) on construit la fonction d'écart :

$$M = \sum_{i,j} \left((x(\xi_i) - \overline{x}(\xi_i))^2 + (y(\xi_j) - \overline{y}(\xi_j))^2 \right) \qquad (14)$$

fonction qui ne dépend que du couple (N_C, P_C). On minimise la fonction M par la méthode de Vignes [25] améliorée par Malengé et de Santiago [17] , en utilisant un calculateur IBM 1800 (voir annexe A III 3). On obtient ainsi les valeurs optimales du couple (N_C, P_C) qui conduisent au meilleur accord avec les points expérimentaux. Les figures 37, 38 et 39 montrent quelques exemples de profils optimisés et l'accord est en général excellent avec les points expérimentaux, la validité des résultats étant d'autant meilleure que le nombre de prélèvements est plus grand.

Nous avons également traité les résultats obtenus en lit lâche par Cavers et Ewanchyna [1] ; ils ont tracé à la fois les profils de concentration dans la phase continue et dans la phase dispersée en utilisant le système ternaire Méthylisobutylcétone (MIK) - Eau - Acétone dans une colonne à pulvérisation de 116 cm de hauteur et de 3,82 cm de diamètre. Le modèle conduit à un bon accord entre les profils expérimentaux et les profils calculés, justifiant ainsi sa validité et l'hypothèse selon laquelle le mélangeage axial dans la phase dispersée est négligeable (voir annexe A III 4).

III. 53 Résultats de l'optimisation

III.531 Profils

L'allure des profils de concentration dépend de la valeur du

rapport de partition r .

- si r est voisin de 1, les profils sont quasi-linéaires et parallèles comme le montre la figure 37.

- si r est supérieur à 1, l'enrichissement de la phase dispersée est important et le profil de phase continue s'aplatit (figure 38) ; le saut de concentration à l'entrée de la phase continue est faible.

- si r est inférieur à 1, l'appauvrissement de la phase continue est grand et le saut en représente une fraction importante (figure 39).

III.532 Nombre d'unités de transfert et nombre de Péclet

Le nombre d'unités de transfert vrai N_C est toujours supérieur au nombre d'unités de transfert apparent N_{Ca} , que l'on calculerait à partir des concentrations d'entrée et de sortie des deux phases, du fait de l'existence du mélangeage axial dans la phase continue caractérisé par le nombre de Péclet P_C [14, 18, 19] . Dans le cas simple où $r = 1$, on peut facilement calculer le rapport N_C / N_{Ca} en fonction du couple (N_C, P_C) [1] ; lorsque $r \neq 1$, on peut également évaluer N_{Ca} en fonction de N_C, P_C et r à partir de l'efficacité globale $E = x(0)$. Mais le couplage du transfert de matière (caractérisé par N_C) et du mélangeage axial (caractérisé par P_C) ne permet pas la séparation entre ces termes sous la forme de nombre d'unités de transfert :

$$\underset{\text{transfert}}{N_C} = \underset{\substack{\text{nombre}\\\text{apparent}}}{N_{Ca}} + \underset{\substack{\text{nombre d'unités}\\\text{de dispersion}}}{NUD} \qquad (15)$$

ou de hauteurs d'unités de transfert :

$$\underset{\substack{\text{hauteur}\\\text{apparente}}}{HUT_a} = \underset{\substack{\text{hauteur}\\\text{vraie}}}{HUT_v} + \underset{\substack{\text{hauteur d'une}\\\text{unité de dispersion}}}{HUD} \qquad (16)$$

NUD et HUD dépendent à la fois de N_C, P_C et r.

On ne peut donc pas directement comparer le transfert de matière proprement dit et le mélangeage axial : on pourra simplement parler de baisse d'efficacité due au mélangeage axial (voir ci-dessous § III.54) et on

verra que cette baisse est d'autant plus importante que P_C est petit.

Le tableau 8 regroupe les paramètres du fonctionnement hydrodynamique β, $\bar{d}$, V_r ainsi que les valeurs du rapport de partition r et du couple (N_C, P_C) optimal. Les deux dernières colonnes fournissent les coefficients de transfert de matière k_C et de dispersion axiale α_C calculés d'après (6) et (7). On remarquera que N_C et P_C sont plus faibles en lit lâche qu'en lit dense, ces deux effets se combinant pour donner au lit dense une efficacité nettement plus importante qu'au lit lâche.

III.533 Coefficient de transfert de matière k_C

Des mesures décrites en annexe A III 5 ont permis de mesurer le coefficient de transfert de matière entre une goutte isolée et une phase continue immobile suivant une procédure analogue à celle utilisée par Loutaty et Vignes [12] en transfert de chaleur. Le tableau 9 groupe les résultats obtenus avec les deux ternaires Heptane - Eau - Acétone et Heptane - DMSO - Benzène.

Nous avons reporté sur la figure 40 les coefficients de transfert de matière relatifs au lit dense, au lit lâche et, pour ces deux ternaires, à une goutte isolée : k_C est proportionnel à la vitesse relative V_r^∞ des deux phases (ou à la vitesse terminale de la goutte isolée V_r) et l'accord entre les valeurs obtenues sur la colonne à pulvérisation et sur la goutte isolée est excellent, confirmant la validité du mode de dépouillement utilisé.

Le nombre de Margoulis défini par $Ms_C = k_C / V_r$ est donc constant et prend les valeurs numériques suivantes :

$9{,}3.10^{-4}$ pour Heptane - DMSO - Benzène (Heptane dispersé)

$5{,}0.10^{-4}$ pour DMSO - Heptane - Benzène (DMSO dispersé)

$1{,}7.10^{-4}$ pour Heptane - Eau - Acétone (Heptane dispersé)

Le dépouillement des profils de concentration obtenus par Cavers et Ewanchyna [1] conduisent à une valeur de :

$5{,}4.10^{-4}$ pour MIK - Eau - Acide Acétique (MIK dispersée)

On rapprochera ces résultats de ceux obtenus par Loutaty, Vignes et le Goff [14] qui ont abouti aux mêmes conclusions et ont obtenu :

$Ms_C = h / (\rho C_P)_C V_r = 9{,}6.10^{-4}$ en transfert de chaleur par contact direct pour le couple Kérosène - Eau.

.III.534 Coefficient de dispersion axiale

Le coefficient de dispersion axiale augmente rapidement avec V_r comme le montre la figure 41, confirmant que le mélangeage axial est beaucoup plus important en lit lâche qu'en lit dense. Les résultats sont plus dispersés que ceux relatifs au coefficient de transfert de matière car une petite erreur dans la détermination expérimentale du saut de concentration à l'entrée de la phase continue entraîne une erreur assez importante sur P_C et donc sur α_C.

D'autre part, il est possible également que α_C dépende du diamètre des gouttes $\bar{d}$ qui n'est pas le même pour toutes les manipulations. L'accord avec les résultats obtenus en transfert de chaleur par Loutaty et coll. [14] est bon et la courbe moyenne obtenue par ces auteurs décrit bien nos résultats.

III.54 Efficacité globale d'une colonne à pulvérisation

III.541 Baisse de l'efficacité globale due au mélangeage axial

L'efficacité globale E_C de la colonne relative à la phase continue est égale à x(0) :

$$E_C = x(0) = \frac{C_{CE} - C_{CS}}{C_{CE} - C_{DE}/m} \qquad (17)$$

qui est donc une fonction de N_C, P_C et r (voir annexe A III 2). L'efficacité globale E_C^x que l'on obtiendrait s'il n'y avait pas de mélangeage axial serait :

$$\begin{cases} E_C^x = \dfrac{N_C}{1 + N_C} & \text{si } r = 1 \qquad (18) \\[2ex] E_C^x = \dfrac{e^{(1-r)N_C} - 1}{e^{(1-r)N_C} - r} & \text{si } r \neq 1 \qquad (19) \end{cases}$$

Le rapport E_C/E_C^x qui est toujours inférieur à 1 permet de chiffrer la baisse d'efficacité due au mélangeage axial. Le calcul de E_C/E_C^x a été fait sur ordinateur pour neuf valeurs de r et pour un ensemble de couples de valeurs (N_C, P_C). La figure 42 présente, pour le cas $r = 1$, les variations de E_C/E_C^x en fonction de P_C pour plusieurs valeurs de N_C. On constate que ce rapport est une fonction croissante de P_C et que pour $N_C > 3$ les courbes sont très voisines, la perte d'efficacité atteignant 30 % pour de faibles valeurs de P_C. Les figures 43 et 44 présentent les courbes de variation du rapport E_C/E_C^x en fonction de P_C pour $N_C = 3$ et $N = \infty$ xx dans le cas où r est inférieur à 1 (figure 43) ou supérieur à 1 (figure 44).

Quand r est inférieur à 1, les courbes correspondant à $N_C = 3$ et $N_C = \infty$ sont très différentes alors qu'elles sont assez voisines dans l'autre cas. L'examen de ces deux figures montre également que la baisse d'efficacité due au mélangeage axial correspondant à un certain couple (N_C, P_C) est maximale pour $r = 1$ et qu'elle est d'autant plus faible que r est plus grand $(r > 1)$ ou plus petit $(r < 1)$.

On constatera enfin que pour les cas correspondant à nos résultats expérimentaux, la baisse d'efficacité due au mélangeage est toujours assez importante et qu'elle est plus élevée en lit lâche qu'en lit dense du fait que la dispersion axiale y est plus importante.

III.542 Hauteur équivalente à un plateau théorique

On caractérise souvent l'efficacité d'un extracteur par la hauteur équivalente à un étage théorique HET . Bien que cette notion soit globale et ne fasse pas intervenir les mécanismes fondamentaux du transfert et du mélangeage axial et qu'elle soit donc très difficile à extrapoler, nous avons déterminé le nombre d'étages théoriques à partir de la courbe de partage et des valeurs des concentrations à l'entrée et à la sortie de chaque phase par la méthode classique de Mac Cabe et Thiele. Les résultats traduits en hauteur équivalente à un étage théorique sont portés dans l'avant-dernière colonne du tableau 7 et présentés sur la figure 45. On constate que les deux ternaires conduisent à des HET comparables et qu'en moyenne le lit dense paraît deux fois plus efficace que le lit lâche. On notera

xx Quand N_C est très grand, E_C^x est égal à 1 si $r < 1$ et à $1/r$ si $r > 1$, E_C est égal à $\left[e^{-(1-1/r)P_C} - r\right] \Big/ \left[e^{-(1-1/r)P_C} - r^2\right]$ si $r \neq 1$ et à $(P_C+1)/(P_C+2)$ si $r = 1$.

qu'on obtient des HET voisines de 20 cm en lit dense, ce qui paraît très intéressant si on les compare à celles obtenues avec d'autres types d'extracteurs qui présentent tous des capacités inférieures à diamètre égal [23] (voir annexe A III 6).

III.6 CONCLUSION

Cette étude a permis tout d'abord de montrer qu'en extraction liquide - liquide, une colonne à pulvérisation peut fonctionner en lit dense d'une façon stable, pour peu que la phase dispersée soit le solvant. Le transfert de matière a alors lieu de la phase continue vers les gouttes et la coalescence est réduite au minimum.

Confirmant les résultats obtenus dans notre laboratoire en transfert de chaleur par contact direct, nous avons montré que le modèle de l'écoulement piston avec dispersion axiale dans la phase continue rend compte des profils expérimentaux de concentration. La connaissance de ces profils permet de déduire le coefficient vrai de transfert, ainsi que le coefficient de dispersion axiale, qui traduit le mélangeage axial de la phase continue. Nos résultats montrent que, comme en transfert de chaleur, ces deux coefficients sont une fonction simple de la vitesse relative des deux phases liquides, vitesse qui apparaît être le facteur principal régissant l'hydrodynamique et le transfert. En particulier, le coefficient de transfert lui est proportionnel aussi bien pour le lit lâche et le lit dense que pour une goutte isolée, le coefficient de proportionnalité ne dépendant que de la nature du système ternaire. Enfin, le lit dense, beaucoup moins mélangé que le lit lâche, et offrant une plus grande surface d'échange, permet d'atteindre une efficacité globale plus grande. Cet avantage s'ajoute aux grands débits liquides qui peuvent être traités dans une colonne à pulvérisation pour faire de celle-ci un extracteur efficace.

Il reste cependant à étudier l'influence du diamètre de la colonne sur l'ensemble des paramètres et surtout sur le coefficient de mélangeage axial qui augmente pour la majorité des types d'extracteurs quand le diamètre croît.

III.7 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[1] CAVERS S.D., EWANCHYNA J.E., Can. J. Chem. Eng., 35, 1957, 113

[2] DUNN I., LAPIDUS L., ELGIN J.C., A.I.Ch.E. Journal 11, 1965, 158

[3] FLEMING J.F., JOHNSON H., Chem. Eng. Progr., 49, 1953, 497

[4] GEANKOPLIS C.J., HIXSON N.A., Ind. & Eng.Chem., 42, 1950, 1141

[5] GIER T.H., HOUGEN J.O., Ind. & Eng. Chem., 45, 1953, 1362

[6] GRESKOVICH E.J., Ind. & Eng. Chem., Proc. Des. Dev., 8, 1969, 573

[7] GROOTHUIS H., ZUIDERWEG F.J., Chem. Eng. Sci., 12, 1960, 228

[8] GROOTHUIS H., ZUIDERWEG F.J., Chem. Eng. Sci., 19, 1964, 63

[9] JEFFREYS G.V., LAWSON G.B., Trans. Inst. Chem. Eng., 43, 1965, T294

[10] JOHNSON H.F., BLISS H., Trans. Amer. Inst. Chem. Eng. 42, 1946, 331

[11] LEE J. C., HODGSON T.D., Chem. Eng. Sci., 23, 1968, 1375

[12] LETAN R., KEHAT E., A.I.Ch.E. Journal, 14, 1968, 405

[13] LOUTATY R., VIGNES A., Chem. Eng. Sci., 25, 1970, 201

[14] LOUTATY R., VIGNES A., LE GOFF P., Chem. Eng. Sci., 24, 1970, 1795

[15] LOUTATY R., LE GOFF P., Journées d'extraction liquide - liquide, Toulouse, 5-6 novembre 1970

[16] Mc FERRIN A.R., DAVISON R.R., A.I.Ch.E. Symposium, Chicago, Nov-Déc., 1970

[17] MALENCE J.P., DE SANTIAGO M., Communication non publiée

[18] MIYAUCHI T., VERMEULEN T., Ind. & Eng. Chem., Fundamentals, 2, 1963, 113

[19] MIYAUCHI T., U.S.A.E.C., Report No. UCRL 3911, 1957

[20] PERRUT M., LOUTATY R., Chimie et Ind.- Gén. Chim., 103, 1970, 2545

[21] PERRUT M., LOUTATY R., Chem. Eng. Journal, A paraître

[22] PERRUT M., LOUTATY R., Chem. Eng. Sci., A paraître

[23] PONIKAROV I.I., NIKOLAEV A.M., ZHAVORONKOV N.M., Int. Chem. Eng., 2, 1962, 546

[24] SLEICHER C.A., A.I.Ch.E. Journal, 5, 1959, 115.

[25] VIGNES J., Thèse de Doctorat es-Sciences Physiques, Univ. de Paris 1969

QUATRIEME PARTIE

MESURE DE L'EFFICACITE D'UNE COLONNE PAR LA METHODE IMPULSIONNELLE - VARIATION DE L'EFFICACITE AVEC LE DIAMETRE DE LA COLONNE

IV.1 Résumé

IV.2 Introduction

IV.3 Mise en oeuvre de la méthode impulsionnelle

IV.4 Comparaison avec la méthode de mesure en régime permanent

IV.5 Mesure de l'efficacité de colonnes de 15 et 30 cm de diamètre

IV.6 Variation de la hauteur moyenne d'étage théorique avec le diamètre de la colonne

IV.7 Variation du coefficient de dispersion axiale avec le diamètre de la colonne

IV.8 Conclusion

IV.9 Références bibliographiques

IV.1 RESUME

La mesure de l'efficacité d'extracteurs de grande capacité étant très difficile à réaliser en régime permanent, l'utilisation d'une méthode plus rapide et moins coûteuse est nécessaire.

La méthode consistant à analyser la réponse de l'appareil à une impulsion de soluté transférable injecté dans l'une des phases a été mise au point sur une colonne de 5 cm de diamètre en utilisant le ternaire Heptane - Eau - Acétone. Les résultats obtenus sont très voisins de ceux mesurés en régime permanent.

Nous avons utilisé cette méthode pour mesurer l'efficacité de deux colonnes à pulvérisation de 15 et 30 cm de diamètre fonctionnant en lit lâche ou en lit dense avec le ternaire Kérosène - Eau - Méthyléthylcétone. Nous en déduisons la variation de la hauteur moyenne d'étage théorique et la variation du coefficient de dispersion axiale en fonction du diamètre de la colonne en lit lâche et en lit dense.

IV.2 INTRODUCTION

La plupart des études expérimentales poursuivies en laboratoire mettent en oeuvre des colonnes ou des réacteurs de très faible capacité pour des raisons évidentes de coût, de place, d'approvisionnement et de stockage. Il est donc en général impossible d'extrapoler les résultats à l'échelle semi-industrielle ou industrielle.

Après l'étude du transfert de matière en lit lâche et en lit dense dans des colonnes à pulvérisation de 5 cm de diamètre, il s'avérait nécessaire d'utiliser des colonnes de diamètre nettement supérieur afin de prévoir les dimensions d'un extracteur industriel. C'est dans cette optique que notre laboratoire s'est doté de deux colonnes de type Elgin de 15 et 30 cm de diamètre et de 195 cm et 255 cm de hauteur pratique (236 cm et 310 cm de hauteur totale).

La mesure de l'efficacité de ces colonnes est pratiquement impossible en régime permanent vu leur grande capacité. C'est pour cela que nous avons mis au point une méthode de mesure impulsionnelle étudiée théoriquement par Defives et Rojey [4] .

Nous avons testé cette méthode sur la colonne de 5 cm de diamètre avec le système ternaire Heptane - Eau - Acétone afin de comparer l'efficacité mesurée par la méthode impulsionnelle avec l'efficacité mesurée en régime permanent (3e partie). Le ternaire Kérosène - Eau - Méthyléthylcétone a été utilisé dans les colonnes de 15 et 30 cm de diamètre.

IV.3 MISE EN OEUVRE DE LA METHODE IMPULSIONNELLE

IV.31 Principe de la méthode

L'efficacité E_C rapportée à la phase continue est définie par

(1) $$E_C = \frac{C_{CE} - C_{CS}}{C_{CE} - C_{DE}/m}$$ en régime permanent.

Lorsque la colonne fonctionne en régime permanent sans transfert de matière (phases ne contenant pas de soluté par exemple) et si on injecte une quantité Q de soluté dans la phase continue, on peut définir l'efficacité E_I rapportée à la phase continue par

(2) $$E_I = 1 - \frac{q}{Q}$$ si q est la quantité correspondante de soluté qui sort de la colonne dans la phase continue.

Defives et Rojey [4] ont montré théoriquement que si le "système" est linéaire (courbe de partage linéaire, équations de transfert linéaires...), l'efficacité E_I mesurée par la méthode impulsionnelle est égale à E_C . On notera bien que la forme de l'impulsion d'entrée n'entre pas en ligne de compte et que seule la connaissance des quantités Q et q de soluté est nécessaire pour calculer E_I. Il n'en est pas du tout de même dans des mesures de distribution de temps de séjour.

IV.32 Techniques expérimentales

Les deux ternaires utilisés sont tels que la phase continue est l'eau qui est rejetée à l'égout après son passage dans la colonne. La phase dispersée circule en circuit ouvert ou fermé (voir figure 43). La colonne est mise en fonctionnement, les deux phases étant pures et la phase dispersée tournant en circuit fermé (robinets R1 ouvert, R2 fermé). Quand le régime permanent est atteint, on injecte une quantité Q de soluté dans la phase continue avant son entrée dans la colonne. On ferme R1 et on ouvre R2 de façon que la phase dispersée tourne en circuit ouvert. La phase continue (Eau) est toujours rejetée à l'égout, une partie étant prélevée et analysée

en continu à l'aide d'un spectrophotomètre UV "UVICORD". On suit sur un enregistreur GRAPHIRAC (SEFRAM) les variations d'absorption lumineuse d'où l'on déduira la courbe de la concentration en soluté en fonction du temps. Quand la phase continue sort de la colonne avec une concentration nulle, la manipulation est terminée. Il reste à purifier la phase dispersée en la faisant circuler dans la colonne en présence d'un grand débit d'eau (après deux passages de l'ensemble de la phase dispersée dans la colonne, elle peut être considérée comme pure).

La colonne A de 5 cm de diamètre a été utilisée munie du plateau 11 . Les colonnes de 15 et 30 cm de diamètre sont du type Elgin, construites en verre, en acier inoxydable et en téflon [11]. Elles sont munies de plateaux perforés de 310 et 1320 trous de 1 mm de diamètre. Elles sont montées en parallèle sur un circuit unique. Les bacs de stockage de phase continue et de phase dispersée sont en polyéthylène et ont une capacité de 1000 l. Pour la colonne A, l'injection de traceur a été faite à l'aide d'une seringue de 10 cm^3 dans le tuyau d'arrivée d'eau, 50 cm avant l'entrée de la colonne de façon que le soluté ait le temps de bien se mélanger à l'eau. Pour les colonnes de grand diamètre, on injecte le soluté à l'aide d'une boucle de 1 litre de volume environ schématisée sur la figure 44 : Un poids Q de soluté est introduit dans le tube cylindrique en verre que l'on remplit ensuite d'eau afin de le dissoudre. Quand la colonne est en régime permanent on ferme partiellement le robinet R4 et on ouvre légèrement R5 et R6 de façon que ls soluté soit introduit mélangé à un volume d'eau assez important, le débit d'eau étant maintenu bien constant.

IV.33 Dépouillement des résultats

Le spectrophotomètre UV délivre une tension I_0 lorsque l'eau pure parcourt la cellule de mesure et une tension I lorsque l'eau contient une concentration C d'un corps absorbant la longueur d'onde choisie (254 m μ) ; le rapport I/I_0 ne dépend que de la concentration C et la loi de Beer-Lambert établit que

$$\frac{I}{I_0} = e^{-kCe} \qquad (3)$$

où e représente l'épaisseur de la cellule de mesure et k le coefficient d'extinction caractéristique du corps absorbant.

Nous avons étalonné l'appareil avec soin en utilisant des échantillons Eau - Acétone et Eau - Méthyléthylcétone de concentration connues. Les courbes d'étalonnage présentées sur la figure 45 montrent que la loi de Beer-Lambert n'est valable que pour des concentrations inférieures à 4 g/l.

Pour dépouiller les courbes obtenues à l'analyseur UV, nous avons utilisé le "courbogyre" (lecteur de courbe automatique) connecté avec l'ordinateur IBM 1800. Après avoir lu et mis en mémoire (disque) la courbe d'étalonnage correspondante $I/I_0 = f(C)$ une fois pour toutes, le courbogyre lit la courbe expérimentale $I/I_0 = g(t)$ que l'ordinateur transforme en $C = C(t)$ grâce à la courbe d'étalonnage. Le débit de sortie étant U_C , la quantité de soluté q sortant de la colonne dans la phase continue est obtenue par intégration :

$$q = U_C \int_{pic} C(t)\, dt \qquad (4)$$

et conduit à l'efficacité $E_I = 1 - \frac{q}{Q}$ (2)

La lecture d'une courbe expérimentale et le calcul de E_I demande moins de 30 s ; la précision de la lecture par le courbogyre est très satisfaisante, l'incertitude due à la lecture étant de l'ordre de 0,5 %. Les programmes de calcul sont détaillés en annexe A IV 2.

IV.4 COMPARAISON AVEC LA METHODE DE MESURE EN REGIME PERMANENT

Dans la 3e partie, nous avons détaillé les résultats obtenus en régime permanent pour trois ternaires dont le système Heptane - Eau - Acétone dans la colonne A. Nous avons mesuré l'efficacité de cette colonne pour des débits identiques par la méthode impulsionnelle. Le tableau 10 rassemble les résultats obtenus par les deux méthodes.

IV.41 Test de la méthode

Afin de vérifier la validité des mesures, nous avons mesuré la

quantité q lorsque la phase continue circule seule (N°01-2) et lorsque la phase dispersée circule en circuit fermé pendant toute la manipulation (N° 03). Dans les deux cas, on retrouve l'égalité entre la quantité injectée Q et la quantité à la sortie de l'eau q avec une précision satisfaisante.

IV.42 Reproductibilité

Pour un couple de débits donnés, plusieurs mesures ont conduits à des résultats voisins (N° 2-3, 7-8, 19-20, 21-22).

IV.43 Linéarité

Pour un couple de débits donnés, les mesures effectuées en injectant 3, 6, 9 et 10 cm^3 de soluté conduisent à des efficacités identiques (N° 1-2-3-4-5).

De plus, le temps d'injection semble ne pas influer car les résultats correspondant à des temps de 1, 2, 5 et 10 s sont très voisins. Pour des raisons de commodité, nous avons injecté 10 cm^3 d'acétone (8,065 g exactement) pendant 2 à 5 s.

IV.44 Comparaison de E_C et E_I

On peut considérer qu'aux fluctuations expérimentales près, les deux méthodes conduisent à des résultats identiques comme le montre la figure 46.

IV.5 MESURE DE L'EFFICACITE DES COLONNES DE 15 ET 30 cm DE DIAMETRE

Ayant vérifié la validité de la mesure de l'efficacité par la méthode impulsionnelle sur la colonne A, nous avons mesuré l'efficacité des colonnes de 15 et 30 cm de diamètre fonctionnant avec le ternaire Kérosène - Eau - Méthyléthylcétone. Nous avons utilisé le Kérosène au lieu de l'Heptane pour des raisons de prix et de sécurité ; la Méthyléthylcétone a été préférée à l'Acétone car son coefficient de partage est beaucoup plus important :

$$\frac{C_{kérosène}}{C_{eau}} = 0,70 \text{ pour la MEC et } 0,11 \text{ pour l'Acétone.}$$

Nous avons pu ainsi faire varier le rapport d'extraction r entre 0,4 et 3.

Ayant évalué l'efficacité E_I , nous avons déterminé le nombre d'étages théoriques NET correspondants grâce à la relation :

$$NET = \frac{\text{Log} \dfrac{1-E_I}{1/r-E_I}}{\text{Log } r} - 1 \qquad (5)$$

déduite de l'équation de Kremser. La hauteur d'étage théorique HET = L/NET est une mesure grossière, mais commode, de l'efficacité d'un extracteur.

Note : La longueur L est en lit lâche la longueur utile de la colonne comprise entre l'injecteur de la phase dispersée et l'arrivée de la phase continue ; en lit dense, c'est la hauteur du lit dense, étant donné qu'on peut négliger le transfert ayant lieu dans la partie occupée par le lit lâche et située juste au dessus de l'injecteur de phase dispersée.

IV.51 Efficacité de la colonne de 30 cm de diamètre

Les résultats expérimentaux relatifs à cette colonne sont rassemblés dans le tableau 11. Les manipulations 1 à 10 ont été faites en introduisant la phase continue au sommet de la colonne à l'aide d'un plateau perforé de gros trous (Φ = 0,3 cm) : lorsque la colonne fonctionnait en lit dense, de gros agglomérats d'eau enveloppés de Kérosène descendaient dans la colonne et contribuaient à diminuer la stabilité de l'écoulement. Reprenant le mode d'injection de la phase continue utilisée par FMC Corporation [7] dans une colonne de 40 cm de diamètre, nous avons remplacé ce système par 4 tubes cylindriques perforés de 60 trous de 2 mm de diamètre chacun plongeant dans la partie supérieure de la colonne comme le montre la figure 47. Le lit dense était dès lors plus stable et la répartition de la phase continue nettement meilleure. Cependant, on constatera que les efficacités correspondant aux manipulations 11 à 22 menées en utilisant ce mode d'injection de la phase continue sont du même ordre de grandeur que les efficacités des précédentes. Des quantités de soluté de l'ordre de 400 à 500 g ont conduit à des pics facilement exploitables et les temps d'injection étaient de l'ordre de 10 s à 1 mn.

Les hauteurs d'étage théorique en lit dense sont nettement supérieures à celles obtenues sur les colonne de faible diamètre : leur valeur moyenne vaut 106 cm. En lit lâche, l'efficacité est très nettement plus faible, les hauteurs d'étage théorique étant comprises entre 256 et 524 cm.

IV.52 Efficacité de la colonne de 15 cm de diamètre

Les résultats expérimentaux relatifs à cette colonne sont rassemblés dans le tableau 12. Les manipulations 01 et 02 montrent la validité des mesures comme dans les deux cas précédents. Le dispositif d'injection de la phase continue est constitué d'un tube vertical conique perforé de 75 trous de 1 mm de diamètre plongeant dans la partie supérieure de la colonne. Les quantités injectées étaient de l'ordre de 100 à 200 g.

On constatera que les hauteurs d'étage théorique en lit dense sont assez importantes et varient assez peu autour de leur valeur moyenne égale à 71 cm. En lit lâche, elles sont nettement plus importante et leur valeur moyenne vaut 152 cm.

IV.6 VARIATION DE L'EFFICACITE AVEC LE DIAMETRE DE LA COLONNE

Nous avons traduit sous forme de hauteur d'étage théorique l'efficacité des colonnes à pulvérisation étudiées en transfert de matière par Cavers et Ewanchyna [2] et en transfert de chaleur par Barbouteau [1] (lit lâche), Greskovich et coll. [6] (lit lâche et lit dense), Loutaty, Vignes et le Goff [8] (lit lâche et lit dense à $r = 1$). Nous avons présente l'ensemble des résultats dont nous disposions dans le tableau 13 et sur les figures 48 et 49 où nous avons représenté la plage de variation de HET autour de la valeur moyenne en fonction du diamètre de la colonne.

La figure 48 relative au lit lâche montre que la HET en transfert de chaleur est moins importante qu'en transfert de matière ; les relations empiriques

$$\left.\begin{array}{ll} (6) & HET_{chaleur} = 0{,}15\ D^{0{,}75} \\ \text{et}\ (7) & HET_{matière} = 0{,}15\ D^{0{,}95} \end{array}\right\} \quad \text{(HET en m et D en cm)}$$

rendent compte de la variation de la hauteur moyenne d'étage théorique. On notera que lorsque le transfert de matière a lieu de la phase dispersée vers la phase continue, la coalescence amène une augmentation importante

de HET (résultats de Cavers et Ewanchyna [2]). La figure 49 relative au lit dense montre également que la HET moyenne en transfert de chaleur est moins grande qu'en transfert de matière. De plus, elle croît beaucoup moins vite avec le diamètre que celle relative au lit lâche :

$$\left.\begin{array}{ll} (8) & HET_{chaleur} = 0{,}83 \log D - 0{,}54 \\ (9) & HET_{matière} = 0{,}83 \log D - 0{,}24 \end{array}\right\} \text{(HET en m, D en cm)}$$

Les relations (8 - 9) sont purement indicatives et étant des moyennes n'ont d'autre intérêt que de préciser l'ordre de grandeur des hauteurs d'étage théoriques.

IV.7 VARIATION DU COEFFICIENT DE DISPERSION AXIALE AVEC LE DIAMETRE DE LA COLONNE

La baisse d'efficacité résultant d'une augmentation du diamètre D de la colonne est due à un accroissement du mélangeage axial puisque l'aire interfaciale et le coefficient de transfert de matière et de chaleur ne sont pas fonction de D. Connaissant l'efficacité E_C de la colonne et le rapport d'extraction r , il suffit d'évaluer N_C pour déterminer la valeur de P_C.

Nous avons mesuré le coefficient de transfert k_C et le nombre de Margoulis Ms_C relatifs à une goutte isolée évoluant dans une phase continue immobile (voir annexe A III 5) avec le système ternaire Kérosène - Eau - Méthyléthylcétone et nous avons trouvé que Ms_C est constant et vaut

$$Ms_C = 7{,}7.10^{-4}.m$$

Supposons que le nombre de Margoulis soit également constant dans la colonne, comme nous l'avons observé pour d'autres systèmes ternaires (3e partie)

$$k_C = Ms_C . V_r \qquad (10)$$

L'étude hydrodynamique de la colonne de 30 cm de diamètre a montré que la loi $V_r / V_r^\infty = p(1 - \beta)$ reste parfaitement vérifiée en lit dense et nous avons obtenu

$$V_r = 5(1 - \beta) \qquad (11)$$

Une mesure du diamètre des gouttes a conduit à $\bar{d} = 0{,}21$ cm valeur très proche de la valeur prévue par la relation (7) de la 1e partie.

Dés lors, il nous est donc possible d'évaluer $N_C = k_C \cdot \frac{6\,\beta}{\bar{d}} \cdot \frac{\Omega}{U_C} \cdot L$

Connaissant r et N_C nous avons calculé l'efficacité E_C correspondant à une série de valeurs de P_C et par interpolation nous avons déduit P_C de la valeur de l'efficacité E_I mesurée par la méthode impulsionnelle.

L'ensemble des résultats relatifs à la colonne de 30 cm de diamètre (opérations menées à 17,5°, m = 0,65) et à la colonne de 15,5 cm de diamètre (opérations menées à 14,5°C m = 0,61) est présenté dans les tableaux 11 et 12. La précision de cette méthode de calcul de α_C est assez médiocre mais on a ainsi une idée de l'ordre de grandeur de ce paramètre.

Sur la figure 50, nous avons rassemblé l'ensemble des résultats obtenus dans notre laboratoire et ceux de Cavers et Henton [3] dont les références sont explicitées dans le tableau 14. Le coefficient de dispersion axiale est proportionnel au carré de la vitesse relative des phases V_r et augmente assez rapidement avec le rapport $D/\bar{d}$ du diamètre de la colonne au diamètre moyen des gouttes comme le montre la figure 51.

IV.8 CONCLUSION

La méthode impulsionnelle permet de mesurer facilement l'efficacité des colonnes de grands diamètres. Testée favorablement sur une colonne de faible diamètre, elle a été appliquée à des colonnes de 15 et 30 cm de diamètre et nous a permis d'obtenir l'ordre de grandeur de la variation de la hauteur d'étage théorique avec le diamètre de la colonne. Plus grandes pour le transfert de matière que pour le transfert de chaleur comme on pouvait le prévoir, ces hauteurs d'étage théorique augmentent assez rapidement avec D en lit lâche, confirmant que les colonnes à pulvérisation ne peuvent être utilisées en lit lâche que pour des extractions nécessitant peu de plateaux théoriques ; par contre, en lit dense, la variation de HET est moins rapide et pour une colonne de 30 cm de diamètre, elle est environ 4 fois moins grande qu'en lit lâche.

Ces variations de HET sont dues à l'augmentation du mélangeage

axial avec le diamètre de la colonne ; comme on peut le constater visuellement, de grands mouvements convectifs prennent naissance dans la colonne, diminuant considérablement l'efficacité. Nous avons évalué l'ordre de grandeur du coefficient de dispersion axiale pour les colonnes de 15 et 30 cm de diamètre et nous disposons ainsi de tous les éléments nécessaires au calcul d'extrapolation.

IV.9 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[1] BARBOUTEAU L., Revue de l'IFP XI n°3, 1956, 358

[2] CAVERS S., EWANCHYNA J.E., Can. Journal Chem. Eng., 35, 1957, 113

[3] HENTON J.E., CAVERS S.D., Ind. Eng. Chem. Fund., 9, 1970, 384

[4] DEFIVES D., ROJEY A., Rapport IFP n° 17 969, 1970

[5] DULAU P., Rapport interne, 1969

[6] GRESKOVICH E.J., BARTON P., HERSH E., A.I.Ch.E. Journal 13, 1967, 1158

[7] F. M. C. Corporation Research and Devel. prog. report 78, 1963, 12

[8] LOUTATY R., VIGNES A., LE GOFF P., Chem. Eng. Sci., 24, 1970, 1795

[9] LOUTATY R., LE GOFF P., Communication Journées Génie Chimique Toulouse, 5-6 nov. 1970

[10] MOUTON, Rapport interne, 1971

[11] PERRUT M., LE GOFF P., Rapport DGRST, 1971

CINQUIEME PARTIE

HYDRODYNAMIQUE ET TRANSFERT DE CHALEUR OU DE MATIERE DANS LES COLONNES A PULVERISATION : Rôle des sillages transportés par les gouttes.

V.1 Résumé

V.2 Introduction

V.3 Le modèle du transfert de chaleur ou de matière

V.4 Résultats expérimentaux : Taille et vitesse de renouvellement des sillages

V.5 Conclusion

V.6 Références bibliographiques

V.1 RESUME

Reprenant le modèle proposé par Letan et Kehat [6] en lui apportant quelques modifications, on étudie le rôle des sillages de phase continue transportés par les gouttes dans le transfert de chaleur ou de matière entre les deux phases mises en contact dans une colonne à pulvérisation liquide - liquide. On aboutit à une interprétation physique du modèle de l'écoulement piston avec dispersion axiale dans la phase continue dont les deux paramètres peuvent être reliés au volume et à la vitesse de renouvellement des sillages.

V.2 INTRODUCTION

Le mélangeage axial qui diminue beaucoup l'efficacité des colonnes à pulvérisation, surtout lorsqu'elles fonctionnent en lit lâche, est dû à un ensemble de phénomènes hydrodynamiques dont le plus important est le transport d'un sillage de phase continue par les gouttes au cours de leur déplacement. Plusieurs auteurs ont mis en évidence la présence d'un tel sillage derrière une sphère rigide ou une goutte se déplaçant au sein d'une phase continue immobile et Yeheskel et Kehat [19] présentent une bibliographie intéressante de ces travaux.

Des études par photographie ont permis à Margavey et coll. [11-14] d'analyser la naissance et le développement de ce sillage. Hendrix et coll. [4] ont mesuré le volume du sillage et l'ont relié aux propriétés physiques du couple de liquides lorsque les gouttes sont non oscillantes. Wilson et Jeffreys [18] ont procédé de même pour des gouttes dont le nombre de Reynolds est inférieur à 220. Edge et Grant [2] ont analysé par cinématographie le comportement des sillages et la façon dont ils se renouvellent. Enfin Yeheskel et Kehat [19] , reprenant la méthode utilisée par Hendrix et coll. [4] ont mesuré, pour plusieurs couples de liquides, le rapport M entre le volume du sillage V_s et le volume de la goutte V_g ; ils ont observé que M est indépendant du diamètre de la goutte et la relation

$$M = 14,21 \frac{\Delta\rho}{\rho_C} - 0,42 \qquad (1)$$

rend bien compte de leurs résultats ; ils ont évalué la distance de parcours de la goutte correspondant au renouvellement total du sillage : elle semble indépendante des propriétés des liquides et de la taille des gouttes et vaut en moyenne 17,6 cm.

S'appuyant sur l'existence des sillages, Letan et Kehat [6] ont proposé un modèle à deux paramètres pour interpréter les profils de température qu'ils ont obtenu en transfert de chaleur par contact direct dans une colonne à pulvérisation fonctionnant en lit lâche [6] ou en lit dense [5,6]; Markowitz et Bergles [15] ont également repris ce modèle pour interpréter

les profils de température obtenus en lit lâche. Kehat et Letan [5] l'ont transposé au cas du transfert de matière et ont analysé les résultats présentés dans la littérature ; ils obtiennent un accord acceptable dans la plupart des cas en prenant pour valeurs des paramètres celles obtenues en transfert de chaleur avec le couple kérosène - eau.

Reprenant ce modèle en le critiquant, nous montrerons que l'on peut donner une interprétation physique du modèle de l'écoulement piston avec dispersion axiale dans la phase continue, présenté dans la troisième partie. Nous relierons le volume et la vitesse de renouvellement des sillages aux deux paramètres de ce modèle N_C, P_C et nous les calculerons à partir des résultats de Loutaty, Vignes et Le Goff [9] en transfert de chaleur, de Cavers et Ewanchyna [1] et de ceux présentés dans la troisième partie en transfert de matière.

V.3 LE MODELE DE TRANSFERT DE CHALEUR OU DE MATIERE

Comme les gouttes transportent un sillage de phase continue de volume M_g, le véritable écoulement à contre-courant n'a pas lieu entre les phases C et D mais plutôt entre les "pseudo-phases" C' et D' définies ainsi :

- La phase D' est constituée de gouttes entourées de leurs sillages ; si n est le débit de gouttes dans la colonne : $n = U_D / V_g$, le débit de phase D' est :

$$U'_D = n(V_g + MV_g) = U_D(1 + M) \qquad (2)$$

- La phase C' est constituée par la phase continue n'appartenant pas aux sillages. Comme le débit net de phase continue est U_C, le débit de la phase C' est

$$U'_C = U_C + n\,MV_g = U_C + U_D M \qquad (3)$$

V.31 Critique du modèle de Letan et Kehat

On se réfèrera à l'annexe A V et on raisonnera en transfert de chaleur dans tout ce qui suit, la transposition au transfert de matière étant très simple.

Ces auteurs proposent un modèle - exposé en annexe A V - à deux paramètres pour rendre compte de l'échange de chaleur ou de matière en lit lâche :

- M rapport du volume du sillage V_s au volume de la goutte V_g
- S vitesse de renouvellement du sillage ; S est défini comme le rapport entre le volume du sillage renouvelé dS_s quand la goutte s'est déplacée de dz, et le volume V_g de la goutte :

$$S = \frac{dS_s}{dz}\,\frac{1}{V_g} \qquad (4)$$

En lit dense, ils font intervenir S ainsi que M et M', rapports des volumes du sillage au volume de la goutte correspondant à la partie occupée par le lit lâche et à la partie occupée par le lit dense.

Ce modèle suppose un certain processus de transfert de chaleur : un élément de phase continue est porté par contact à la température de la goutte T_D et va se mélanger au sillage ; cette hypothèse de transfert parfait uniquement avec la goutte nous semble très restrictive et conduit en particulier au résultat surprenant selon lequel la température du sillage T_s n'est pas comprise entre les températures de la phase continue T_C et de la phase dispersée T_D. D'autre part, ce mécanisme fait abstraction des propriétés physiques des fluides en présence, les valeurs de S semblant indépendantes du système utilisé. Enfin l'allure des profils obtenus en transfert de chaleur par Loutaty, Vignes et Le Goff [9] et en transfert de matière par l'auteur (voir la troisième partie) ne fait pas du tout apparaître les zones décrites et ne satisfait pas aux hypothèses faites par les auteurs.

C'est pour ces différentes raisons que nous allons présenter un modèle voisin, beaucoup moins restrictif et permettant de donner une interprétation physique du modèle de l'écoulement piston avec dispersion axiale dans la phase continue qui s'est révélé très cohérent avec nos résultats et ceux de Loutaty, Vignes et Le Goff [9].

V.32 Mécanisme de transfert de chaleur (ou de matière) dans la colonne

Les sillages ayant atteint leur volume final V_s au bout d'un parcours l à partir du distributeur, le transfert a lieu par échange d'éléments dV_s de phase continue avec le sillage :

$$dS_s\,(T_C - T_s)(\rho C_P)_C = (\rho C_P)_D\, V_g dT_D + (\rho C_P)_C\, V_g\, M\, dT_s \qquad (5)$$

Or, d'après (4) et en posant $R = \dfrac{(\rho C_P)_D}{(\rho C_P)_C}$, il vient :

$$S\,(T_C - T_s) = R\,\frac{dT_D}{dz} + M\,\frac{dT_s}{dz} \qquad (6)$$

alors que Letan et Kehat obtiennent deux équations :

$$\begin{cases} R \dfrac{dT_D}{dz} + S\,(T_D - T_C) = 0 & \text{(A 5)} \\ M \dfrac{dT_s}{dz} + S\,(T_s - T_D) = 0 & \text{(A 7)} \end{cases}$$

dont la somme membre à membre n'est autre que (6).

Le bilan de chaleur dans la phase continue s'écrit alors :

$$(U_C + MU_D)(\rho C_P)_C\, dT_C = (\rho C_P)_C\, U_D \frac{dS_s}{V_g}\,(T_C - T_S)$$

soit :
$$\frac{dT_C}{dz} + \frac{S}{\dfrac{U_C}{U_D} + M}\,(T_s - T_C) = 0 \qquad (7)$$

Nous avons donc deux équations et trois inconnues alors que Letan et Kehat, en supposant un certain mécanisme de transfert, ont trois équations et trois inconnues et peuvent résoudre.

Au lieu d'introduire comme eux une hypothèse très restrictive conduisant au fait que la température T_s n'est pas comprise entre T_C et T_D, nous allons rapprocher le modèle du modèle de l'écoulement piston avec dispersion axiale dans la phase continue. Le système d'équations, mises sous forme adimensionnelle, correspondant à ce modèle s'écrit :

$$\begin{cases} \dfrac{d^2x}{d\xi} + P_C \dfrac{dx}{d\xi} - N_C P_C (x - y) = 0 \\ \dfrac{dy}{d\xi} - N_C . r\,(x - y) = 0 \end{cases}$$

Si on élimine $N_C\,(x - y)$ entre ces deux équations, il vient :

$$\frac{d^2x}{d\xi^2} + P_C \frac{dx}{d\xi} - \frac{P_C}{r}\frac{dy}{d\xi} = 0 \qquad (8)$$

Or, en éliminant T_S entre (6) et (7) et en introduisant les efficacités locales x et y,($r = (\rho C_P)_C\, U_C \,/\, (\rho C_P)_D\, U_D$ en transfert de chaleur),on a :

$$\frac{d^2x}{d\xi^2} + \frac{L\,S}{M}\,\frac{U_C}{U_C + MU_D}\,\frac{dx}{d\xi} - \frac{L\,S}{M}\,\frac{U_C}{U_C + MU_D}\,\frac{1}{r}\,\frac{dy}{d\xi} = 0 \qquad (9)$$

Les équations (8) et (9) sont formellement identiques et en les rapprochant on obtient de même que Letan et Kehat [7] :

$$P_C = \frac{L\,S}{M}\,\frac{U_C}{U_C + MU_D} \qquad (10)$$

Dans cette relation intervient la longueur L de la colonne. On se reportera à la remarque 3 ci-dessous qui justifie l'emploi de L et non de L - 1.

V.33 Détermination du volume des sillages

On peut déterminer le volume des sillages très facilement à partir des valeurs des températures T_{CE}, T'_{CE} et T_{DS} définies par la figure 55. En effet, les gouttes arrivant à la température T_{DS} coalescent et les sillages qui ont une température T_{sS} se mélangent avec la phase continue entrant dans la colonne à une température plus élevée T_{CE}. Le bilan thermique dans cette section de coalescence s'écrit :

$$U_C\,(\rho C_P)_C\,T_{CE} + MU_D\,(\rho C_P)_C\,T_{sS} = (U_C + MU_D)(\rho C_P)_C\,T'_{CE}$$

soit encore :

$$U_C\,(T_{CE} - T'_{CE}) = MU_D\,(T'_{CE} - T_{sS}) \qquad (11)$$

Or le contact entre la goutte et le sillage étant très intime, le transfert est important. On peut donc supposer qu'à l'extrémité de la colonne (z = L), la température des gouttes et celle des sillages sont très voisines, soit $T_{sS} \simeq T_{DS}$. La relation (11) permet alors de déduire le rapport M :

$$M = \frac{U_C}{U_D}\,\frac{T_{CE} - T'_{CE}}{T'_{CE} - T_{DS}} \qquad (12)$$

En introduisant les efficacités locales x et y, la relation (8) devient :

$$M = \frac{U_C}{U_D}\,\frac{x(1)}{y(1) - x(1)} \qquad (9)$$

Les deux paramètres M et S apparaissent comme des fonctions du couple (N_C, P_C) de paramètres du modèle piston avec dispersion axiale. En effet, x(1) et y(1) peuvent être obtenues à partir de N_C et P_C (voir annexe A III 2) et S est égal à :

$$S = \frac{P_C}{L}\,M\left(1 + M\,\frac{U_D}{U_C}\right) \qquad (13)$$

Par contre, le passage inverse du couple (M,S) au couple (N_C, P_C) n'est pas possible de façon simple, l'équation donnant N_C étant transcendante.

Remarque 1 : On notera le cas simple où $r = 1$:

On obtient $$M = \frac{U_C}{U_D} \frac{N_C \left(1 - e^{-(N_C+P_C)}\right)}{P_C + e^{-(N_C+P_C)}}$$

qui est très voisin de $$M = \frac{U_C}{U_D} \frac{N_C}{P_C} \qquad (14)$$

dès que $(N_C + P_C)$ vaut quelques unités.

On en déduit $$S = \frac{U_C}{U_D} (N_C + P_C) \frac{N_C}{L} \qquad (15)$$

et à l'inverse :

$$P_C = \frac{S\,L}{M} \frac{U_C}{U_C + MU_D} \qquad (16)$$

$$N_C = S\,L \frac{U_D}{U_C + MU_D} \qquad (17)$$

Comme on pouvait le prévoir intuitivement, le transfert est d'autant meilleur et le mélangeage d'autant plus faible que S est grand et M petit.

Remarque 2 : La température T_s des sillages est toujours comprise entre T_C et T_D. En effet, de la relation (7) on tire en reportant la valeur de S :

$$T_s - T_C = -\frac{dT_C}{dz} \frac{U_C}{U_D} \frac{L}{MP_C}$$

Soit en introduisant les grandeurs sans dimension :

$$\frac{T_s - T_C}{T_{CE} - T_{DE}} = \frac{dx}{d\xi} \frac{U_C}{U_D} \frac{L}{MP_C}$$ qui est toujours négatif (voir annexe A III 2).

De même on a :

$$\frac{T_C - T_D}{T_{CE} - T_{DE}} = -\frac{dy}{d\xi} \frac{1}{rN_C}$$

$$\frac{T_s - T_D}{T_{CE} - T_{DE}} = \frac{dx}{d\xi} \frac{U_C}{U_D} \frac{1}{MP_C} - \frac{dy}{d\xi} \frac{1}{rN_C}$$ qui est toujours positif (le calcul n'est possible analytiquement que pour $r = 1$).

Remarque 3 : La taille des sillages est supposée constante sur toute la

longueur L de la colonne alors que leur formation n'est pas instantanée et qu'elle requiert un certain trajet de la goutte. Cependant, vu le bon accord entre les profils expérimentaux et les profils optimaux calculés à partir du modèle de l'écoulement piston avec dispersion axiale - qui suppose que N_C et P_C sont uniformes sur toute la longueur de la colonne - on peut admettre que tout se passe comme si M et S étaient également uniformes.

V.4 RESULTATS EXPERIMENTAUX : TAILLE DES SILLAGES ET VITESSE DE RENOUVELLEMENT

Nous avons déterminé M à partir des profils expérimentaux obtenus par Loutaty, Vignes et Le Goff [3] en transfert de chaleur, Cavers et Ewnachyna [1] et nous-même (3e partie) en transfert de matière ; S a été calculé à partir de M et P_C suivant la relation (10). Nous avons également calculé les valeurs du couple (M^*, S^*) directement à partir du couple (N_C, P_C).

Nous avons constaté que le couple (M^*, S^*) est voisin du couple (M,S) dans le majorité des cas, montrant la cohérence des calculs de (N_C, P_C) et de (M^*, S^*). Les écarts sont cependant assez importants pour certaines manipulations de Loutaty et coll. [9] ; cela provient du fait qu'ils ont déterminé N_C et P_C graphiquement sans optimisation. Nous avons retenu dans la suite les valeurs du couple (M,S), M étant obtenu à partir des profils grâce à la relation (12).

V.41 Volume des sillages

Les figures 56 et 57 présentent les variations de M en fonction du taux de rétention de la phase dispersée β relatives au transfert de chaleur (Loutaty [10]) et au transfert de matière (Cavers et Ewnachyna [1] et 3e partie).

Sur la figure 56 relative au couple kérosène - eau, nous avons comparé nos résultats à ceux obtenus par Letan et Kehat [6] sur le même couple de liquides et sur des gouttes de taille comparable. On remarque que leur courbe moyenne qui présente un palier entre $\beta = 0,20$ et $\beta = 0,40$ est au-dessous de la nôtre pour $\beta < 0,15$ et nettement au-dessus pour des valeurs de $\beta > 0,15$. Par contre, la courbe moyenne obtenue par Markowitz et Bergles

[15] en lit lâche (entre 5 et 10 %) est en assez bon accord avec nos résultats.

Le désaccord constaté entre nos résultats en lit dense et ceux de Letan et Kehat peut s'expliquer ainsi. Sur une certaine distance, au dessus du distributeur de gouttes, il existe toujours une zone fonctionnant en lit lâche (voir figure 55) où les sillages se forment. Lorsque les gouttes traversent l'interface lit lâche lit dense, leurs sillages se rompent partiellement [8] . Ainsi, dans la partie en lit lâche, leur taille (donc M) est supérieure à celle qu'elles ont en lit dense. Or, Letan et Kehat [6] déduisent, dans les deux types d'écoulement, M à partir du profil des températures relatif à cette zone en lit lâche. Par contre, nos résultats sont déduits à partir du bilan dans la section de coalescence et le volume de sillage mesuré de cette manière correspond bien à l'écoulement considéré. Ainsi en lit dense les valeurs obtenues par Letan et Kehat ne peuvent qu'être supérieures aux nôtres.

D'autre part, la courbe moyenne rendant compte de nos résultats s'extrapole très bien pour $\beta = 0$ vers $M = 2,15$, valeur expérimentale obtenue par Yeskehel et Kehat [19] avec une goutte unique de kérosène montant dans de l'eau. Par contre, la courbe de Letan et Kehat ne s'extrapole pas vers cette valeur.

On constatera que M est environ deux fois plus important en transfert de chaleur qu'en transfert de matière. Cette différence pourrait provenir de la modification des interfaces provoquée par le transfert de matière ; leur mobilité étant moins grande, il peut en résulter que le sillage ait un volume nettement inférieur.

V.42 Vitesse de renouvellement des sillages

La vitesse de renouvellement des sillages S est connue avec une incertitude assez grande et les résultats sont dispersés. Cependant, S semble indépendant du taux de rétention β et sa valeur moyenne $\overline{S}$ varie dans le même sens que le nombre de Margoulis rapporté à la phase continue $Ms_C = k_C/Vr$ (voir tableau 15). La figure 58 montre que pour les cinq systèmes considérés, $\overline{S}$ varie suivant la relation empirique :

$$\overline{S} = 14 \, (Ms_C)^{0,8} \qquad (18)$$

On constatera que la valeur moyenne de S^* est toujours voisine de $\overline{S}$.

Letan et Kehat [6] ont observé que les valeurs de S calculées par leur modèle à partir de leurs résultats en transfert de chaleur avec le couple kérosène - eau étaient également assez dispersées autour d'une valeur moyenne comprise entre 0,023 et 0,030 cm^{-1} , valeur nettement inférieure à celle obtenue à partir des résultats de Loutaty, Vignes et Le Goff [9] .

Yeheskel et Kehat [19] introduisent la notion de hauteur de renouvellement du sillage H_S qui est la longueur correspondant au renouvellement total du sillage ; si on suppose que la vitesse de renouvellement S est constante, on a

$$H_S = M / S \qquad (19)$$

Ces auteurs ont constaté que pour plusieurs couples de liquides, H_S relative à une goutte isolée est à peu près constante et vaut en moyenne 17,6 cm. Comme ces auteurs ont observé que pour des gouttes isolées de kérosène dans l'eau, M vaut 2,15 , on en déduit la valeur de S : $S = 0,122\ cm^{-1}$ qui est deux fois plus grande que la valeur moyenne que nous avons obtenue.

V.5 CONCLUSION

Le modèle de l'écoulement piston avec dispersion axiale correspond à une réalité physique : les gouttes entraînent un sillage de phase continue au cours de leur déplacement et ces sillages se renouvellent en permanence.

Le volume relatif des sillages M et leur vitesse de renouvellement S sont liés de façon biunivoque avec les deux paramètres du modèle N_C et P_C. M est une fonction décroissante de β et est environ deux fois plus faible en transfert de matière qu'en transfert de chaleur ; S peut être considéré comme constant et semble directement lié au nombre de Margoulis, c'est-à-dire à la vitesse de transfert de chaleur ou de matière elle-même.

Le mécanisme de transfert mettant en jeu les sillages ne tient pas compte des grands mouvements de convection qui prennent naissance - surtout en lit lâche - dans des colonnes de diamètre important . On peut

penser que la contribution de ces turbulences à la dispersion axiale est faible dans les colonnes qui ont été utilisées pour obtenir les résultats consignés dans ce chapitre. Il n'en serait pas de même pour les colonnes de 15 cm ou 30 cm de diamètre où l'efficacité est nettement moins importante que dans les petites colonnes à cause d'un fort accroissement de la dispersion axiale.

V.6 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[1] CAVERS S.D., EWANCHYNA J.E., Can. J. Chem. Eng., 35, 1957, 113

[2] EDGE R.M., GRANT C.D., Int. Sol. Extr. Conf. La Haye, 1971, n° 71

[3] GEANKOPLIS C.J., HIXSON N.A., Ind. Eng. Chem., 42, 1950, 1141

[4] HENDRIX C.D., DAVE S.B., JOHNSON H.F., A.I.Ch.E. J., 13, 1967, 1073

[5] KEHAT E., LETAN R., A.I.Ch.E., 17, 1971, 984

[6] LETAN R., KEHAT E., A.I.Ch.E. J., 14, 1968, 398

[7] LETAN R., KEHAT E., A.I.Ch.E. J., 14, 1968, 831

[8] LETAN R., KEHAT E., A.I.Ch.E. J., 16, 1970, 955

[9] LOUTATY R., VIGNES A., LE GOFF P., Chem. Eng. Sci., 24, 1970, 1795

[10] LOUTATY R., Thèse de doctorat es-Sciences Univ. de Nancy, 1968

[11] MAGARVEY R.H., BISHOP R.L., Can. J. Phys., 39, 1961, 1418

[12] MAGARVEY R.H., BISHOP R.L., The Phys. of Fluids, 4, 1961, 800

[13] MAGARVEY R.H., BLACKFORD B.L., Can. J. Phys. 40, 1962, 1036

[14] MAGARVEY R.H., MACLATCHY C.S., A.I.Ch.E. J., 14, 1968, 260

[15] MARKOWITZ A., BERGLES A.E., 9th Nat. Heat Transf. Conf., A.I.Ch.E.-A.S.M.E., Minneapolis, 1969, n° 11

[16] PERRUT M., LOUTATY R., LE GOFF P., à paraître

[17] PERRUT M., LOUTATY R., Chem. Eng. Sci., sous presse

[18] WILSON M.P., JEFFREYS G.V., Int. Sol. Extr. Conf. La Haye, 1971, n° 71

[19] YEHESKEL J., KEHAT E., Chem. Eng. Sci., 26, 1971, 1223

SIXIEME PARTIE

PROCEDURE D'EXTRAPOLATION.

CALCUL PREVISIONNEL D'UNE COLONNE A PULVERISATION

VI.1 Résumé

VI.2 Introduction

VI.3 Calcul des caractéristiques optimales de la colonne

VI.4 Discussion

VI,5 Références bibliographiques

VI.1 RESUME

On présente une procédure de calcul d'une colonne industrielle fondée sur les lois décrivant la formation des gouttes, le comportement hydrodynamique, le transfert de matière et la dispersion axiale et appuyée sur un ensemble de manipulations simples effectuées en laboratoire.

VI.2 INTRODUCTION

Un des objets principaux du Génie Chimique est de prévoir des installations industrielles à partir des lois obtenues en laboratoire. Alors que dans certains domaines comme la distillation, la procédure d'extrapolation est particulièrement sûre, le calcul des appareils d'extraction liquide - liquide est souvent empirique et nécessite des marges de sécurité très larges puisque les lois régissant la formation et la coalescence des dispersions sont mal connues.

Letan et Kehat [1] d'une part, Loutaty et Le Goff [2] d'autre part ont proposé une procédure d'extrapolation des colonnes à pulvérisation fonctionnant en lit dense. Mais leurs calculs, ne tenant pas compte de la variation du mélangeage axial avec le diamètre de la colonne, conduisent à des ordres de grandeur de la hauteur de la colonne erronés.

Ayant déterminé la variation du coefficient de dispersion axiale α_C avec le rapport $D / \bar{d}$ du diamètre de la colonne au diamètre des gouttes, ainsi que les lois régissant la formation des gouttes et l'hydrodynamique de la colonne, nous sommes en mesure d'améliorer ces méthodes de calcul, généralisant en particulier celle de Loutaty et Le Goff [2] au cas où le facteur d'extraction r n'est pas égal à 1.

VI.3 CALCUL DES CARACTERISTIQUES OPTIMALES DE LA COLONNE

VI.31 Données

L'industriel a en général un certain débit de charge à traiter en vue de la raffiner ou d'en extraire un soluté avec une certaine efficacité E. Il aura à faire une succession de choix qui le conduiront à utiliser tel solvant, tel appareil d'extraction, tel rapport de débits, etc... Nous traiterons le cas où, ayant choisi le solvant et la colonne à pulvérisation fonctionnant en lit dense, il cherche à optimiser les dimensions et le fonctionnement de celle-ci afin d'obtenir l'efficacité E désirée à moindre coût.

Nous allons envisager l'ensemble des choix successifs à opérer.

VI.32 Choix de la phase à disperser

Nous avons vu que le lit dense n'existe que si le transfert a lieu de la phase continue vers la phase dispersée : on doit donc disperser le solvant. On notera cependant que si le transfert est très faible (purification), le lit dense peut également exister dans l'autre sens ; pour des raisons de capacité (diamètre minimal), on choisira de disperser la phase la plus visqueuse. (C'est en particulier possible dans le cas d'un échangeur de chaleur par contact direct).

VI.33 Choix du rapport des débits

Le choix du rapport des débits doit tenir compte du coefficient de partage m du soluté entre la charge et le solvant ; en particulier, on doit utiliser un taux de solvant supérieur au taux de solvant minimum nécessaire pour réaliser l'extraction souhaitée. Le choix du rapport des débits conduit au coefficient d'extraction $r = U_C / mU_D$.

VI.34 Choix du diamètre des gouttes. Calcul de l'injecteur

Disposant des débits U_C et U_D à traiter, on doit choisir le diamètre moyen $\bar{d}$ des gouttes que l'on désire former. A partir de ce choix de $\bar{d}$, on peut en déduire le diamètre Φ et le nombre N des perforations à opérer sur le plateau.

En effet, si l'on suppose, comme nous l'avons vérifié, que le diamètre moyen des gouttes formées par rupture de jets est voisin de celui observé en l'absence de transfert de matière, la relation (7) de la première partie conduit à Φ par une itération très rapidement convergente :

$$\frac{\bar{d}}{\Phi} = 2{,}06\ (1 - 0{,}185\ Eo) \qquad \text{avec} \qquad Eo = \frac{g\Delta\rho}{\sigma}\,\Phi^2 \qquad (1)$$

Le nombre de trous doit être calculé de façon que les gouttes se forment par rupture de jets. La vitesse de formation des jets U_J étant donnée par la relation :

$$U_J = 1{,}73 \left[\frac{\sigma}{\rho_D \Phi} \left(1 - \frac{\Phi}{d} \right) \right]^{\frac{1}{2}} \qquad (2)$$

On choisira N de façon que la vitesse d'injection

$$U_N = \frac{U_D}{N\pi\Phi^2/4} \qquad \text{soit égale à } 2U_J \text{ environ.}$$

Ainsi on sera sûr que les gouttes se formeront par rupture de jets et auront donc la taille $\bar{d}$ escomptée même si le débit U_D fluctue autour de sa valeur supposée. Au diamètre $\bar{d}$ de la goutte correspond la vitesse V_r^∞ .

VI.35 Choix du taux de rétention β . Calcul des dimensions de la colonne

Le choix du taux de rétention β de la phase dispersée permet de calculer le diamètre et la hauteur de la colonne. Le diamètre D de la colonne est directement obtenu par la relation

$$\frac{V_r}{V_r^\infty} = p\,(1 - \beta) \qquad (3)$$

En effet, elle peut encore s'écrire :

$$\frac{U_D}{\beta\Omega} + \frac{U_C}{(1 - \beta)\Omega} = p\,V_r^\infty\,(1 - \beta) \qquad (4)$$

d'où l'on tire facilement la section Ω et donc le diamètre D.

La vitesse relative $V_r = V_r^\infty\, p(1 - \beta)$ va nous permettre d'évaluer le coefficient de transfert $k_C = V_r.Ms_C$ à partir du nombre de Margoulis Ms_C et le coefficient de dispersion axiale $\alpha_C = A.V_r^2$, A étant fonction du rapport $D / \bar{d}$ (quatrième partie). L'aire interfaciale a est égale à $6\beta / \bar{d}$. On dispose donc des valeurs de

$$\frac{N_C}{L} = \frac{k_C a\Omega}{U_C} \qquad \text{et} \qquad \frac{P_C}{L} = \frac{U_C}{\Omega\alpha_C}$$

Comme nous l'avons vu dans la troisième partie, l'efficacité souhaitée E est une fonction de r, N_C et P_C. Connaissant E, r, N_C/L et P_C/L , il est donc possible de tirer L par un calcul itératif.

VI.36 Mesures de laboratoire

A la suite du choix du rapport des débits, du diamètre moyen des gouttes et du taux de rétention β ,on peut donc évaluer les caractéristiques de la colonne moyennant la connaissance de certaines grandeurs dont la mesure

en laboratoire est nécessaire : propriétés physiques des fluides en présence (en particulier tension interfaciale σ , rapport des viscosités μ_C / μ_D conduisant au coefficient p), vitesse V_r^∞ et nombre de Margoulis Ms_C d'une goutte isolée évoluant dans une phase continue immobile en fonction de son diamètre d (comme nous l'avons décrit en annexe A III 5). De plus, comme on est dans l'incapacité de prévoir le domaine de débits pour lesquels le lit dense existe de façon stable, il est nécessaire de le déterminer grossièrement à l'aide de manipulations simples faites sur une colonne de laboratoire.

VI.37 Optimisation des choix

Les trois paramètres r, $\overline{d}$ et β peuvent varier sur certaines plages compatibles avec l'existence du lit dense et avec les contraintes technologiques (en particulier, il est difficile de percer des trous au-dessous d'un certain diamètre pour réaliser l'injecteur); il reste à optimiser chacune de ces valeurs pour minimiser le coût de l'appareil en tenant compte à la fois du coût d'investissement et du coût de fonctionnement.

VI.4 DISCUSSION

Le calcul d'une colonne à pulvérisation fonctionnant en lit dense ne pose pas de difficultés majeures et l'extrapolation est assez sûre jusqu'à des diamètres de 50 à 60 cm. Le problème essentiel qui demeure est celui de la fiabilité de l'appareil. En effet, le lit dense, qui existe de façon stable pour de nombreux couples de liquides de pureté technique expérimentés en laboratoire, est-il compatible avec la qualité des fluides industriels, avec les fluctuations de leur pureté et de leurs débits ? Il est encore impossible d'avancer des arguments solides en ce domaine et seule une utilisation industrielle pendant une durée assez longue pourrait apporter des éléments de réponse.

Nous pouvons cependant dire qu'il est préférable d'appliquer le lit dense à des extractions assez faibles afin que la tension

interfaciale entre les phases - ainsi que les autres propriétés physiques - ne varie pas beaucoup le long de la colonne.

VI.5 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[1] LETAN R., KEHAT E., Brit. Chem. Eng., 14, 1969, 803

[2] LOUTATY R., LE GOFF P., Chim. & Ind. Génie Chim., 102, 1969, 1560

CONCLUSION

Au cours de ce travail, nous avons successivement dégagé les lois régissant la formation des gouttes, l'hydrodynamique du lit lâche et du lit dense en régime permanent et en régime transitoire, le transfert de matière et la dispersion axiale ; nous avons obtenu les valeurs des paramètres intervenant dans ces lois pour des liquides aux propriétés physiques très différentes et pour des diamètres de colonnes variant de 5 à 30 cm. Moyennant la mise en oeuvre de manipulations simples en laboratoire, relatives au cas considéré, nous sommes désormais munis des outils nécessaires au calcul d'une colonne industrielle de capacité moyenne et susceptibles d'apporter à l'économiste les données scientifiques nécessaires à l'évaluation d'un projet.

Cependant les valeurs du coefficient de dispersion axiale, dans les colonnes de grand diamètre, déduites de mesures assez imprécises, sont connues avec une grande incertitude et des mesures directes de distribution des temps de déjour seront faites d'une part pour vérifier si le modèle de l'écoulement piston avec dispersion axiale s'applique bien à ces colonnes et d'autre part pour évaluer avec plus de précision le coefficient de mélangeage axial. Par ailleurs, comme ce coefficient augmente rapidement quand le rapport $D/\bar{d}$ croît, nous pensons qu'il serait intéressant d'utiliser un garnissage grillagé à très haute porosité, compatible avec l'existence du lit dense (en particulier, ne provoquant pas la coalescence des gouttes) et dont le rôle serait de briser les grands tourbillons de convection et donc de diminuer la dispersion axiale.

La comparaison du "lit dense" avec d'autres types d'extracteurs (RDC, ARDC, KÜNHI, colonne à plateaux, colonne pulsée, colonne à garnissage... etc) est pratiquement impossible en toute généralité et seule l'évaluation des coûts respectifs dans un cas particulier a un sens. Cependant, dans tous les cas, une colonne à pulvérisation fonctionnant en lit dense a une capacité nettement supérieure à celle de tout autre extracteur de même diamètre ; par contre, son efficacité risque d'être plus faible, tout en restant acceptable si la colonne a un diamètre inférieur à 1 m. La colonne à

pulvérisation, munie de sa régulation, est certainement, parmi tous les extracteurs, celui dont le coût de construction est de beaucoup le plus bas et la maintenance la plus sommaire, vu l'extrême simplicité de l'appareil. Sa souplesse semble très satisfaisante et le domaine de débits pour lequel le lit dense existe est en général assez étendu.

Le problème principal est celui de sa fiabilité : le lit dense, dont l'existence et la stabilité sont directement liées aux phénomènes de coalescence, est-il compatible avec une utilisation industrielle continue ?

Au vu des premiers résultats obtenus sur des unités pilotes, il semble que la réponse soit positive dans le cas du transfert de chaleur par contact direct. Dans le cas du transfert de matière, il en est probablement de même si les différences de concentration des fluides sont faibles et si la tension interfaciale ne varie pas beaucoup dans la colonne. Par contre, on ne peut être aussi affirmatif dans le cas d'extractions importantes.

C'est pour cela que nous recommandons l'utilisation du lit dense en extraction liquide - liquide dans les cas où les débits à traiter sont importants et où le flux de transfert est faible. Ce domaine recouvre la purification de produits finis (lavages,...) et le traitement des eaux résiduaires contenant des substances dangereuses ou toxiques.

NOTATIONS

a	: Aire interfaciale $\left(= \frac{6\ \beta}{\bar{d}} \right)$, cm^{-1}
C	: Concentration, $g.l^{-1}$
C_p	: Chaleur spécifique, $Cal.g^{-1}.(°C)^{-1}$
c	: Coefficient (II - 20) , cm^{-2}
D	: Diamètre de la colonne, cm
d	: Diamètre d'une goutte, cm
$\bar{d}$	: Diamètre moyen des gouttes, cm
E	: Efficacité
e	: Epaisseur de la cellule UV, cm
g	: Accélération de la pesanteur, $cm.s^{-2}$
H	: Hauteur du lit dense, cm
HET	: Hauteur équivalente à un étage théorique, cm ou m
HUT	: Hauteur d'une unité de transfert, cm
HUD	: Hauteur d'une unité de dispersion, cm
h	: Coefficient de transfert de chaleur, $cal.cm.^{-2}s.^{-1}(°C)^{-1}$
I	: Intensité lumineuse
K, K'	: Coefficients
k	: Coefficient d'extinction
k	: Coefficient de transfert de matière, $cm.s^{-1}$
L	: Longueur de la colonne, cm ou m
M	: Volume relatif des sillages ($= V_s/V_g$)
M	: Fonction d'écart (III - 14)
M_s	: Nombre de Margoulis ($= k/V_r$)
m	: Coefficient de partage ($= C_D/C_C$ à l'équilibre)
N	: Nombre de trous du plateau perforé
NET	: Nombre d'étages théoriques
N_C	: Nombre d'unités de transfert relatives à la phase continue
P	: Nombre sans dimension (§ I.5)
P_C	: Nombre de Péclet
p	: Coefficient (§ I.62)
Q	: Quantité de soluté injecté, g
q	: Quantité de soluté quittant la colonne dans la phase continue, g
R	: Rapport des capacités calorifiques ($= (\rho C_P)_D / (\rho C_P)_C$)

r : Coefficient d'extraction ($= U_C / mU_D$)

S : Surface de contact, cm^2

S : Vitesse de renouvellement des sillages ($= \frac{1}{V_g} \frac{dS_s}{dz}$) , cm^{-1}

s : Variable de Laplace

T : Température, °C

t : Temps, s

U : Débit, $l.h^{-1}$

U_N : Vitesse d'injection, $cm.s^{-1}$

V : Volume, cm^3

V : Vitesse, $cm.s^{-1}$

$\mathcal{V}$: Volume de phase dispersée sous forme de gouttes, cm^3

W : Capacité de la colonne ($= U_C + U_D / \Omega$) , $cm. s^{-1}$

X : Débit adimensionnel de la phase dispersée ($= U_D / V_r^\infty \Omega$)

x : Efficacité locale relative à la phase continue (III.3)

x : Variable courante de hauteur (II.7) , cm

Y : Débit adimensionnel de la phase continue ($= U_C / V_r^\infty \Omega$)

y : Efficacité locale relative à la phase dispersée (III.4)

y : Variable courante de hauteur (II.12) , cm

z : Variable courante de hauteur , cm

α : Coefficient de dispersion axiale, $cm^2. s^{-1}$

β : Taux de rétention de la phase dispersée

Δ : Opérateur différence

Δ : Déterminant (A III 2)

δ : Discriminant (A III 2)

Φ : Diamètre des trous ou de l'ajutage, cm

λ : Valeur propre (A III 2)

μ : Viscosité, cpoise

ρ : Masse volumique, $g.cm^{-3}$

σ : Tension interfaciale, $dyne.cm^{-1}$

ξ : Variable de hauteur adimensionnelle ($= z / L$)

τ : Temps de formation des gouttes, s

Ω : Section de la colonne, cm^2

Exposants

∞ : Goutte isolée

x : Ecoulement piston

Indices

a	: Apparent
C	: Phase continue
D	: Phase dispersée
d	: Lit dense
E	: Entrée
F	: Formation
g	: Goutte
I	: Méthode impulsionnelle
J	: Formation en jets
l	: Lit lâche
p	: Régime permanent
S	: Sortie
s	: Sillage
v	: Vrai
0	: instant initial vitesse nulle

Nom de l'Etudiant : PERRUT Michel

Nature de la Thèse : DOCTORAT ES-SCIENCES PHYSIQUES

Titre de la Thèse : EXTRACTION LIQUIDE - LIQUIDE. HYDRODYNAMIQUE ET TRANSFERT DE MATIERE DANS UNE COLONNE A PULVERISATION.

Vu, approuvé
et permis d'imprimer
Nancy, le février 1972

Le Président du Conseil
de l'Université de Nancy I
J. R. HELLUY